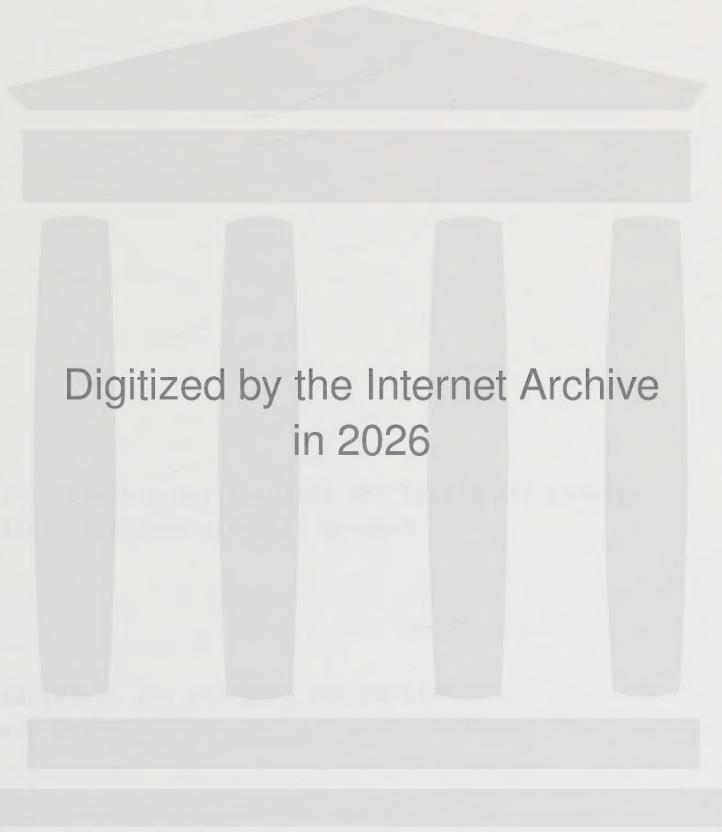


MAGNETISCHER PHASENÜBERGANG
IN NICKEL
UNTER EINACHSIGER ELASTISCHER
ZUG- UND DRUCKSPANNUNG

Wolfgang von Hörsten

1982



Digitized by the Internet Archive
in 2026

MAGNETISCHER PHASENÜBERGANG IN NICKEL
UNTER EINACHSIGER ELASTISCHER
ZUG- UND DRUCKSPANNUNG

Dissertation der Fakultät für Physik der Ludwig-
Maximilians-Universität München

vorgelegt von Wolfgang von Hörsten
aus Berlin

München, den 9.12.1981



1. Berichterstatter: Prof. Dr. K. Stierstadt
2. Berichterstatter: Prof. Dr. J. Peisl

Tag der mündlichen Prüfung: 26.2.1982

DISSERTATIONS - UND FOTODRUCK FRANK GmbH
8000 München 2, Gabelsbergerstraße 15, Tel. 2809090

INHALTSVERZEICHNIS

1. EINLEITUNG	1
2. THEORETISCHE GRUNDLAGEN	4
2.1. Magnetischer Phasenübergang und multikritische Punkte	4
2.2. Curiepunktverschiebung bei anisotroper Austauschwechselwirkung	11
2.2.1. Molekularfeldnäherung	11
2.2.2. Numerische Lösungswege	14
2.3. Kritische Neutronenstreuung	16
2.4. Magnetische Neutronenstreuung	23
3. EXPERIMENTELLER AUFBAU	25
3.1. Proben	25
3.2. Apparatur	27
3.2.1. Allgemeines	27
3.2.2. Probenhalterung	31
3.2.3. Temperaturregelung und -gradient	32
3.2.4. Druck- und Zugspannung	35
4. SUSZEPTIBILITÄTSMESSUNGEN	36
4.1. Induktionsmethode	36
4.2. Auswertung	41
4.2.1. Entmagnetisierendes Feld	42
4.2.2. Wechselfeld-Eindringtiefe	45
4.3. Meßablauf	47
4.4. Ergebnisse der Suszeptibilitätsmessungen	52

5. NEUTRONENSTREUEXPERIMENTE	55
5.1. Kleinwinkelstreueinstrument D11	57
5.2. Streugeometrie	58
5.3. Optimale Dicke der Probe	61
5.4. Meßablauf	62
5.5. Auswertung	64
5.5.1. Inelastizität	64
5.5.2. Fehler und Korrekturen der Streudaten	66
5.6. Ergebnisse der Neutronenstreuung	69
6. DISKUSSION DER ERGEBNISSE	77
6.1. Formanisotropie und Dipol-Dipol-Wechselwirkung	78
6.2. Spannungsanisotropie	82
6.2.1. Erwartungswerte des Crossover	84
6.2.2. Vergleich Experiment und Theorie	85
6.3. Kristallanisotropie	86
6.4. Mögliche allgemeinere Folgerungen für das kritische Verhalten von Nickel	94
6.5. Kritische Exponenten	98
7. ZUSAMMENFASSUNG	100

LITERATURVERZEICHNIS

1. EINLEITUNG

Das Gebiet der Phasenumwandlungen befindet sich seit etwa einem Jahrzehnt in einer besonders expansiven Entwicklung. Als eines der Ergebnisse wird heute die Universalität von kontinuierlichen Phasenübergängen (2.Ordnung) als bewiesen angesehen. Universalität bedeutet, daß kritische Phänomene ganz unterschiedlicher thermo= dynamischer Eigenschaften und verschiedener Substanzen nicht von der Art ihrer atomaren Bestandteile abhängen. Maßgeblich ist nur die Symmetrie des Systems, das heißt genauer, seine räumliche Dimension und die Anzahl der wechselwirkenden Komponenten der Teilchen. Auch die Art und die Details der wechselwirkenden Kräfte spielen keine Rolle, hingegen wirkt sich die Reichweite der Wechselwirkung im kritischen Verhalten aus.

Die Einsicht in die wesentliche Rolle der Symmetrie eines Systems brachte es mit sich, daß nun auch Phasenübergänge unter dem Gesichtspunkt neuer zusätzlicher Parameter, wie etwa der richtungs= abhängigen Komponenten von thermodynamischen Variablen untersucht wurden. Hierdurch wurden die Phasendiagramme zunehmend komplexer. Besonders charakteristisch dafür ist das Auftreten einer konti= nuierlichen Folge von Umwandlungspunkten 2.Ordnung anstelle eines einzelnen kritischen Punktes.

Ein wichtiger experimenteller und theoretischer Forschungsbereich sind magnetische Phasenübergänge. Nickel hat einen kontinuierlichen Umwandlungspunkt von ferromagnetischer zu paramagnetischer

Phase bei 630 K. Die allgemeinen magnetischen Eigenschaften von Nickel im gesamten Temperaturbereich sind intensiv untersucht. Auf die Eigenschaften im engeren kritischen Bereich dicht am Curiepunkt trifft dies nicht im gleichen Maße zu, sodaß hier ein interessantes Aufgabenfeld offensteht.

Im Sinne der komplexeren kritischen Phänomene bietet Nickel die günstige Möglichkeit, seiner ferromagnetischen Austauschwechselwirkung mit einer elastischen mechanischen Verformung eine variable magnetische Anisotropie aufzuprägen. Infolge seiner negativen Magnetostriktion wird so bei einer uniaxialen Druckspannung eine magnetisch leichte Richtung parallel zur Druckspannung induziert, senkrecht dazu eine magnetisch schwere Ebene. Eine leichte Richtung ist dadurch gekennzeichnet, daß die bis zur Sättigung gemessene Magnetisierungsarbeit kleiner ist als in einer schweren Richtung. Wenn eine Zugspannung am Kristall angelegt wird, sind leichte und schwere Richtungen vertauscht.

Ziel dieser Arbeit war, an Nickel unter dem zusätzlichen Einfluß einer variablen magnetischen Spannungsanisotropie kritische Phänomene zu untersuchen. Die genaue Fragestellung war zum einen: Wie wirkt sich die induzierte Vorzugsrichtung auf die Fluktuationen des Ordnungsparameters in verschiedenen Richtungen aus, und zum anderen, welche Curiepunktsverschiebung, also eine kritische Linie 2.Ordnung, entsteht als Funktion des Anisotropieparameters?

Die vorliegende Arbeit beginnt etwas ausführlicher mit der Theorie zum kritischen Verhalten unter Einwirkung von Anisotropien. Die an Modellen mit lokalisierten Spins gewonnenen theoretischen Voraussagen werden in einem charakteristischen Punkt vom Experiment an Nickel nicht erfüllt, nämlich in Bezug auf Vorzeichen und Verlauf der Curiepunktsverschiebung. Diese Diskrepanz weist auf die Schwierigkeiten hin, Nickel in seinem kritischen Verhalten zwischen den Grenzfällen Bandmodell und lokalisiertem Spinmodell einzuordnen.

Anschließend wird die Ornstein-Zernike-Näherung für kritische Neutronenstreuung behandelt. Kritische Streuung wird im Experiment als Verbreiterung eines Bragg-Reflexes sichtbar. Im Gegensatz zu ihrer simplen Beschreibung durch eine Lorentz-Funktion ist ihre Herleitung nicht ganz so einfach.

In den Experimenten der vorliegenden Arbeit wurden zwei Nickel-Einkristalle unterschiedlicher Orientierung mit zwei Meßmethoden untersucht: Durch Suszeptibilitätsmessungen wurde die Curiepunktsverschiebung bei schrittweise veränderter Spannungsbelastung ermittelt, während mit Neutronenstreuexperimenten die Richtungsabhängigkeit von Streuintensitäten im kritischen Temperaturbereich gemessen wurde. Dabei wurden jeweils der unbelastete und der mit maximaler elastischer Spannung belastete Kristall miteinander verglichen.

2. THEORETISCHE GRUNDLAGEN

2.1. Magnetischer Phasenübergang und multikritische Punkte

Die wesentliche und zentrale Größe einer Phasenumwandlung ist der Ordnungsparameter /1-3/. Im Falle eines ferromagnetischen Übergangs 2.Ordnung ist dieser die spontane Magnetisierung M . Sie nimmt gegen die kritische Temperatur hin kontinuierlich ab, und wird durch das Potenzgesetz beschrieben:

$$M = M_0 (-\tau)^\beta . \quad (2.1)$$

Darin ist die fortan verwendete reduzierte Temperatur τ definiert durch

$$\tau = \frac{T - T_c}{T_c}, \quad \text{bei elastischer Spannung } \sigma : \tau = \frac{T - T_c(\sigma)}{T_c(0)} .$$

Response-Größen wie die Suszeptibilität χ , die sich als zweite Ableitung der Freien Enthalpie nach der magnetischen Feldstärke ergibt, oder auch die Korrelationslänge ξ der kritischen Fluktuationen, divergieren bei Annäherung an T_c wie

$$\chi = \chi_0^\pm \cdot |\tau|^{-\gamma}, \quad (2.2)$$

und

$$\xi = \xi_0^\pm \cdot |\tau|^{-\nu}. \quad (2.3)$$

Die Indices $\pm$ verweisen auf die jeweils verschiedenen Werte der Amplituden χ_0 und φ_0 beim Annähern an T_c von oben oder unten her. Die Zahlenwerte der Exponenten kennzeichnen ihre Zugehörigkeit zu einer Universalitätsklasse /4/.

In Abb. 2.1 sind die für diese Arbeit relevanten Potenzgesetze mit experimentellen Ergebnissen für Nickel dargestellt.

Die früheste theoretische Beschreibung von Phasenumwandlungen lieferte die Landau-Theorie /5/ oder Molekularfeldtheorie, die jedoch kritische Exponenten zumeist nur qualitativ richtig voraussagen konnte. Die Erweiterung der Theorie um den Gesichtspunkt von schwachen Anisotropien (also der Richtungsabhängigkeit der Wechselwirkungen), stammt von Riedel und Wegner /6/. Sie leiteten ihre Ergebnisse im Rahmen eines theoretischen Ansatzes homogener Funktionen und der daraus resultierenden Skalenhypothese ab. Von ihnen wurde der Anisotropieparameter g eingeführt, der im Falle eines Magneten aus dem Quotienten von anisotroper und isotroper Energiedichte zu bilden ist:

$$g = \frac{E_{\text{anisotrop}}}{E_{\text{isotrop}}} . \quad (2.4)$$

Die Skalenregeln ermöglichten genauere Vorhersagen von kritischen Exponenten, waren aber ihrer Herleitung nach empirische Gesetze.

Etwa parallel zu diesen Verfahren wurde die Renormalisierungsgruppentheorie auf das Gebiet der Phasenumwandlungen angewendet /7/.

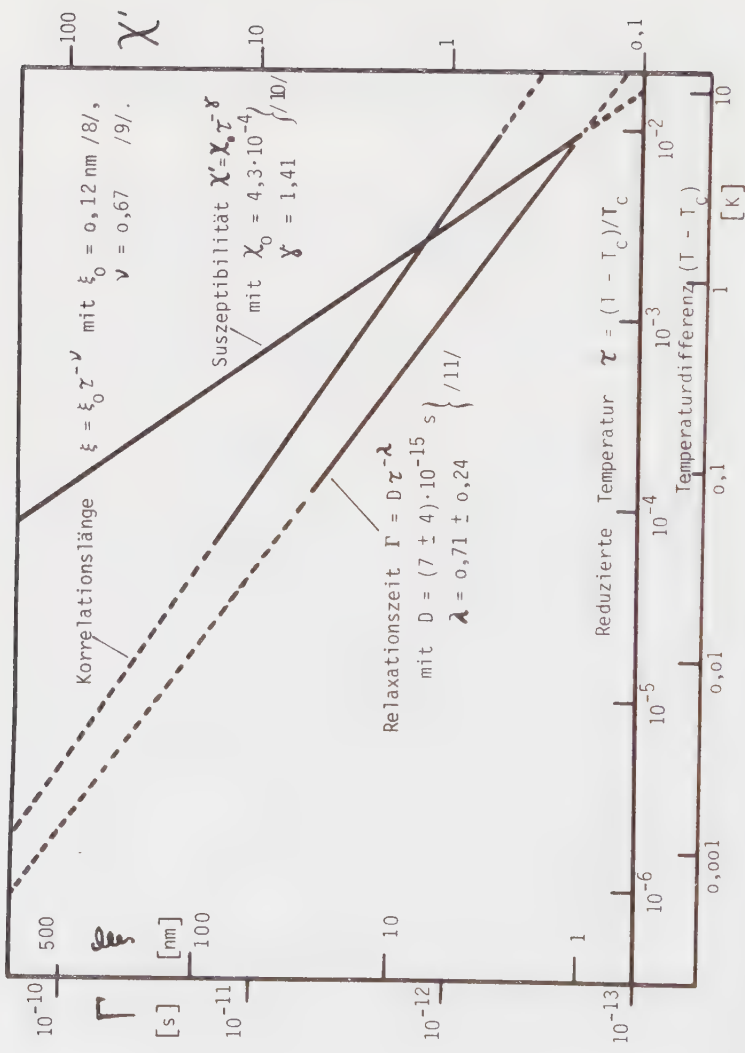
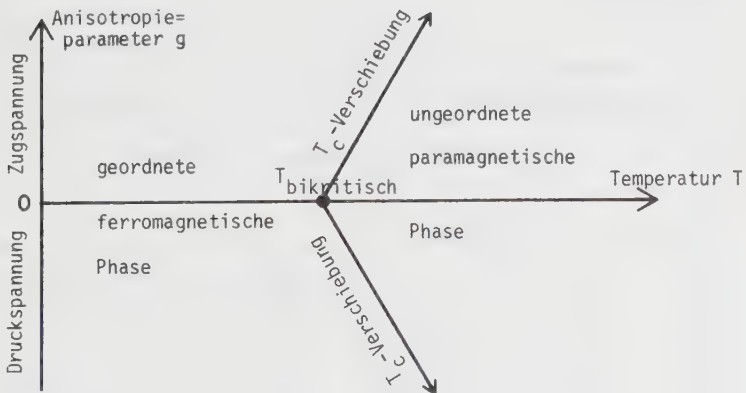


Abb. 2.1: Darstellung von Potenzgesetzen des ferromagnetischen Phasenüberganges von Nickel. Durchgezogene Linien kennzeichnen die Bereiche der Messungen.

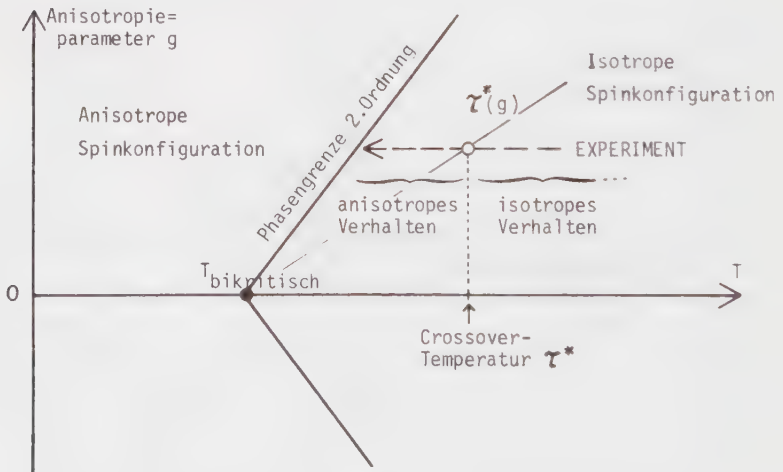
Neben den Methoden der Reihenentwicklung erwies sie sich als das wirksamste Werkzeug in diesem Feld. Sie erbrachte vor allem eine physikalisch begründete Herleitung der Skalenhypothese, und ermöglichte unter anderem die Berechnung der Vielzahl neuer kritischer Exponenten im Zusammenhang mit multikritischen Punkten.

In der gebräuchlichen Bezeichnung werden bi-, tri- und tetra-kritische Punkte in den jeweiligen Phasendiagrammen unterschieden, entsprechend der Anzahl der kritischen Phasengrenzen 2. Ordnung, die in einem solchen Punkt zusammenlaufen. In dieser Betrachtungsweise läßt sich dem Nickel ein bikritischer Phasenübergang zuordnen. Dabei bestimmt der aus der Spannungsanisotropie folgende Anisotropieparameter g für positive und für negative Werte jeweils eine Verschiebung des Curiepunktes, schematisch wie im folgenden Bild:

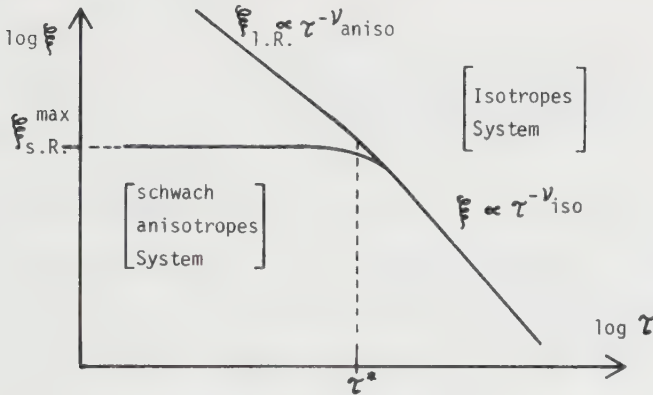


Die mechanische Spannung reicht maximal bis zur Grenze der elastischen Verformung im kritischen Temperaturbereich, hier als kritische Schubspannung σ_c bezeichnet. Sie liegt bei /12/
 $\sigma_c = 1,4 \text{ N/mm}^2$.

Die theoretischen Grundlagen und Formen der Phasendiagramme werden im einzelnen im nächsten Kapitel behandelt. Hier soll abschließend noch der Begriff des Crossover /6,13,14/ erläutert werden: Nach Definition trennt die Phasengrenze 2.Ordnung, die infolge einer Anisotropie entstanden ist, zwei Zustände unterschiedlicher Symmetrie (der Spinkonfiguration). Wenn ein System von hoher Temperatur kommend sich dieser Phasengrenze nähert, so erfolgt die Annäherung entsprechend der bei der hohen Temperatur gegebenen Symmetrie. Von einer bestimmten Crossover-Temperatur an, die noch oberhalb T_c liegt, reagiert jedoch das System bereits auf die (niedrigere) Symmetrie der Phase unterhalb der kritischen Linie. Zur Illustration ist im folgenden Bild ein entsprechender experimenteller Weg gezeichnet:



Nach /6/ sind bei einer schwachen einachsigen Anisotropie folgende Veränderungen der kritischen Exponenten zu erwarten:



In der leichten Richtung (l.R.) divergieren Suszeptibilität, Korrelationslänge, usw., auch unterhalb von τ^* beim weiteren Annähern an T_c , aber nun mit den kleineren Exponenten γ_{aniso} und ν_{aniso} der niedrigeren Symmetrie. In der schweren Richtung (s.R.) gibt es oberhalb von τ^* keinen Unterschied zur leichten Richtung. Unterhalb von τ^* jedoch divergieren die betreffenden Größen nicht weiter, sondern münden in einen Maximalwert ein. Durch die Crossover-Temperatur werden demnach die Potenzgesetze unterteilt, zum Beispiel

$$\text{oberhalb von } \tau^* \text{ in } \chi_{\text{l.R.}} = \chi_0 \cdot \tau^{-\nu_{\text{iso}}} , \quad (2.5)$$

$$\text{und unterhalb } \tau^* \text{ in } \chi_{\text{l.R.}} = \chi_0 \cdot \tau^{-\nu_{\text{aniso}}} . \quad (2.6)$$

Die Crossover-Temperatur selbst ist gegeben durch

$$\tau^* = D \cdot g^{1/\emptyset} , \quad (2.7)$$

mit

D: Nichtuniverselle Konstante,
g: Anisotropieparameter,
 $\emptyset$: Crossover-Exponent.

Für die maximale Korrelationslänge in der schweren Richtung unterhalb τ^* gilt die Beziehung

$$\xi_{s.R.} = \xi_0 \cdot g^{-\nu_{iso}/\emptyset} . \quad (2.8)$$

In Tab. 6.2 (Seite 98) sind einige Zahlenwerte der kritischen Exponenten angegeben.

2.2. Curiepunktsverschiebung bei anisotroper Austauschwechselwirkung

2.2.1. Molekularfeldnäherung

Mit einem einfachen Modell soll nun gezeigt werden, wie die wesentlichen Eigenschaften der im vorigen Kapitel angedeuteten Phasendiagramme berechnet werden können.

Der Ausgangspunkt der Molekularfeldnäherung war die von Landau /5/ angegebene Reihenentwicklung der Freien Energiedichte F nach dem Ordnungsparameter M

$$F = aM^2 + bM^4 + c(\nabla M)^2 - k\vec{H}\vec{M}, \quad (2.9)$$

wobei $\vec{H}$ das innere Magnetfeld bedeutet. In einer Arbeit von Bruce und Aharony /20/ wird diese Reihenentwicklung zu weiteren Gliedern fortgesetzt. Die zusätzlichen Terme sind symmetrie=brechende Ausdrücke mit den Magnetisierungskomponenten M_α in den Raumrichtungen α . Unter Vernachlässigung des Gradiententerms und im Feld $H = 0$ ergibt sich dann für die Freie Energiedichte

$$F = \frac{1}{2}rM^2 + uM^4 + \frac{1}{2}g \sum_{\alpha} c_{\alpha} M_{\alpha}^2 + v \sum_{\alpha} M_{\alpha}^4, \quad (2.10)$$

mit der von Bruce u.a. /20/ verwendeten Nomenklatur:

$$r = T_C(g) - T_0 + fg, \quad \text{mit } T_0 = T_C(g=0),$$

g : Parameter der einachsigen Anisotropie,

v : Parameter der kubischen Anisotropie, entsprechend magnetischer

Kristallanisotropie,

c_α : Symmetriestimmende Koeffizienten,

f, u : Konstanten.

Außerdem gilt $\sum c_\alpha = 0$ und $\sum M_\alpha^2 = M^2$.

Einachsige Symmetrie in Raumrichtung $\alpha = 1$ wird durch Wahl von

$$c_1 = 1 \quad \text{und}$$

$$c_{2,3} = -\frac{1}{2}$$

festgelegt. Mit diesen Bedingungen läßt sich Gleichung (2.10)

umformen in

$$F = \frac{1}{2} r' M^2 + \frac{3}{4} g M_1^2 + u M^4 + v \sum_{\alpha} M_{\alpha}^4, \quad (2.11)$$

$$\text{mit } r' = T_c(g) - T_0 + (f - \frac{1}{2})g.$$

Für das durch Gleichung (2.11) beschriebene System ist nun der Gleichgewichtszustand zu bestimmen. Dazu wird die Richtung für $\vec{M}$ gesucht, die die Freie Energiedichte minimalisiert. Mit den richtungsbestimmenden Komponenten von $\vec{M}$ sind die beiden Parameter g und v verknüpft. Jeweils für sich betrachtet, ergeben die betreffenden Terme folgende Bedingungen:

$$\frac{3}{4} g M_1^2 \text{ wird minimal für } g > 0, \text{ wenn } M_1 = 0,$$

$$\text{und für } g < 0, \text{ wenn } M_1 = M.$$

$v \sum_{\alpha} M_{\alpha}^4$ mit der Nebenbedingung $\sum_{\alpha} M_{\alpha}^4 = \text{const.}$, ergibt ein Minimum bei einer Orientierung von $\vec{M}$ in der Raumdiagonalen, und ein Maximum für jede Orientierung von $\vec{M}$ parallel zu einer der drei Koordinatenachsen. Daher lauten die Minimalbedingungen

$$\text{für } v > 0: \vec{M} \text{ raumdiagonal } (M_1 = M_2 = M_3),$$

$$\text{und für } v < 0: \vec{M} \text{ parallel zu einer kubischen Achse.}$$

Mit diesen Vorüberlegungen können dann alle möglichen Konstellationen untersucht werden. So ergibt sich zum Beispiel für

$$v < 0 \quad \text{und} \quad g > 0 :$$

F wird minimal für $M_1 = 0$. Der Koeffizient des ersten Gliedes von Gleichung (2.11) liefert folgende Beziehung zwischen T_c und $g/20$

$$T_c(g) = T_0 + \left(\frac{1}{2} - f\right)g . \quad (2.12)$$

Dies ist schematisch in Abb. 2.2a für positives g dargestellt.

Für den Fall

$$v < 0 \quad \text{und} \quad g < 0$$

wird F minimal für $M_1 = M$ (und $M_{2,3} = 0$). Einsetzen in Gleichung (2.11) ergibt aus dem Koeffizienten von M_1

$$T_c(g) = T_0 - (1 + f)g , \quad (2.13)$$

entsprechend der unteren Hälfte der Abb. 2.2a.

Unter der Bedingung $v > 0$ wird das Phasendiagramm komplexer, denn nun können je nach den Werten der beiden Parameter v und g verschieden orientierte Vorzugsrichtungen miteinander konkurrieren. Dadurch entsteht insbesondere eine neue zusätzliche Phase unterhalb der kritischen Temperatur T_0 . In dieser "Zwischenphase" dreht sich die resultierende Vorzugsrichtung als Funktion von g stetig von einer Flächendiagonalen zu einer kubischen Achse hin. Die Rechnungen hierzu sind umfangreicher, sie führen aber zunächst

zum gleichen Ergebnis zweier Phasengrenzen wie zuvor (2.13) und (2.12). Darüberhinaus ergeben sich dann noch zwei weitere Lösungen für Grenzlinien $T_c(g,v)$ mit T_c -Verschiebungen zu niedrigeren Temperaturen hin. In den Abb. 2.2a und 2.2b nach /20/ sind die möglichen Phasendiagramme dargestellt, mit Ausnahme des Sonderfalles $v = -u$, der zu einem trikritischen Punkt führt.

2.2.2. Numerische Lösungswege

Die Ergebnisse dieser Molekularfeldnäherung werden durch die Renormalisierungsgruppen-Rechnungen der gleichen Autoren in innergrundsätzlichen Struktur bestätigt. Als wichtigste Korrektur ergibt sich jedoch aus der genaueren und wesentlich komplexeren Scaling-Analyse, daß der lineare Verlauf der Phasengrenzen durch Potenzgesetze zu ersetzen ist. Dazu werden neue kritische Exponenten definiert, zum Beispiel der in diesem Zusammenhang maßgebliche "Shift-exponent" Ψ . Für den Bereich sehr nahe T_0 werden die beiden Phasengrenzen oberhalb T_0 dann beschrieben durch

$$T_c(g) \propto T_0 + g^{1/\Psi}, \quad \text{mit } \Psi > 0. \quad (2.14)$$

Die kritischen Linien münden mit dieser Beschreibung tangential in die Temperaturachse ein.

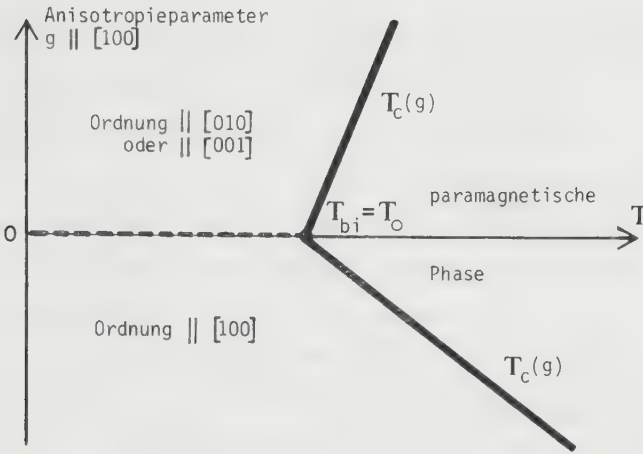


Abb. 2.2a: Phasendiagramm mit bikritischem Punkt T_{bi} aus Molekularfeldnäherung (Parameter $v < 0$, siehe Text).

(---) Phasengrenze 1.Ordnung, (—) Phasengrenze 2.Ordnung.

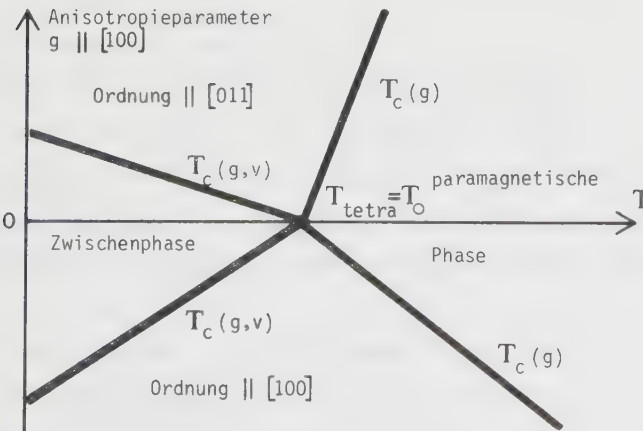


Abb. 2.2b: Phasendiagramm mit tetrakritischem Punkt T_{tetra} aus Molekularfeldnäherung (Parameter $v > 0$, siehe Text).

2.3. Kritische Neutronenstreuung

Die Neutronenstreuemessungen bilden einen wesentlichen Teil der vorliegenden Arbeit. Daher erscheint es angebracht, nach dem vorausgegangenen Abschnitt zur physikalischen Problemstellung auch diese Untersuchungsmethode eingehender zu behandeln. Die Theorie zur kritischen Streuung ist gänzlich unabhängig von der Natur der streuenden Teilchen und vom eigentlichen Wechselwirkungsmechanismus zwischen Neutron und Target. Deshalb wird der besondere Aspekt der richtungsabhängigen Analyse in einem weiteren Kapitel diskutiert.

Kritische Neutronenstreuung in Vorwärtsrichtung wird als Verbreiterung des Primärstrahls sichtbar. In quasielastischer und erster Näherung kann die zum Primärreflex hin ansteigende Streuintensität durch eine Lorentzfunktion beschrieben werden. Dieses sehr einfache Resultat wurde erstmals in theoretischen Arbeiten /21/ von Ornstein und Zernike angegeben. Da in der Literatur zur Neutronenstreuung der spezielle Fall der kritischen Streuung meistens nicht explizit hergeleitet wird, soll im folgenden der Gedankengang von Ornstein und Zernike etwas ausgeführt werden.

Ausgangspunkt ist die grundlegende Beziehung der Streutheorie, die die Winkelverteilung der gestreuten Intensität mit der Korrelationsfunktion der streuenden Teilchen verknüpft. Diese Beziehung wird im allgemeinen unter den Voraussetzungen der 1. Bornschen Näherung abgeleitet /1,22/. Dabei spielen die Eigenschaften der Streuteilchen selbst keine Rolle, ebenso wenig wie die Art der

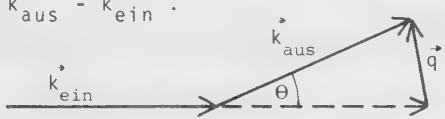
Wechselwirkung innerhalb des Systems der streuenden Teilchen. Für rein statische Streuung kann der Zusammenhang in folgender Form geschrieben werden /23/:

$$\frac{I(\vec{q})}{I_0(\vec{q})} = 1 + n \int d\vec{r} \cdot e^{-i\vec{q}\vec{r}} G(\vec{r}) . \quad (2.15)$$

Dabei bedeuten

- $I(\vec{q})$: Gesamte Streuintensität,
- $I_0(\vec{q})$: Streuintensität am Teilchensystem ohne Wechselwirkung untereinander,
- n : Teilchendichte,
- $G(\vec{r})$: Räumliche Korrelationsfunktion,
- $\vec{q}$: Streuvektor .

Der Streuvektor als wichtigster Parameter in diesem Formalismus wird durch die ein- und austretenden Wellenvektoren $\vec{k}$ definiert.

$$\vec{q} = \vec{k}_{\text{aus}} - \vec{k}_{\text{ein}} . \quad (2.16)$$


In der vorliegenden Arbeit wird die kritische Streuung unter sehr kleinen Winkeln untersucht und nur als elastische Streuung behandelt, daher gilt

$$\vec{k}_{\text{ein}} \approx \vec{k}_{\text{aus}} ,$$

und für den Streuvektorbetrag

$$q = \frac{4\pi}{\lambda} \cdot \sin \frac{\theta}{2} . \quad (2.17)$$

$I(\vec{q})/I_0(\vec{q})$ ist äquivalent einer verallgemeinerten wellenlängen= abhängigen Suszeptibilität $\chi(\vec{q})$, wobei χ formal definiert ist als die Antwort des Systems auf eine äußere räumlich periodische Einwirkung mit der Wellenzahl q .

$$\frac{I(\vec{q})}{I_0(\vec{q})} \equiv \chi(\vec{q}) . \quad (2.18)$$

Im Grenzfall unendlicher Wellenlänge $q \rightarrow 0$ ist $\chi(0)$ identisch mit der statischen Suszeptibilität. Diese enthält den Anteil der Suszeptibilität des Ferromagneten, der am Curiepunkt divergiert.

Gleichung (2.15) läßt sich durch Ausführen der Fourier transformation unmittelbar umformen in

$$\frac{I(\vec{q})}{I_0(\vec{q})} = 1 + n \tilde{G}(\vec{q}) . \quad (2.19)$$

Alle soweit angeführten Beziehungen sind noch quantenmechanisch exakte Ergebnisse.

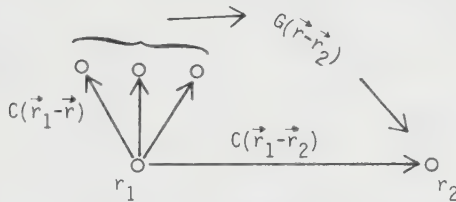
Das eigentliche Problem besteht nun darin, die Korrelationsfunktion $G(\vec{r})$ quantitativ zu berechnen. Das ist auf direktem Weg im allgemeinen nicht möglich. Der Ansatz von Ornstein und Zernike erschließt aber einen indirekten Lösungsweg, bei dem nach Postulieren bestimmter Eigenschaften von $G(\vec{r})$, dessen Verhalten nach einer Fouriertransformation betrachtet wird.

Die grundlegende Idee war zunächst, $G(\vec{r})$ in zwei Anteile aufzuspalten. Der eine sollte die direkte Korrelation $C(\vec{r})$ kurzer

Reichweite zwischen zwei Teilchen repräsentieren, der andere die Summe aller übrigen Korrelationen, die Umwege über benachbarte Teilchen enthalten. Aus dieser Vorstellung resultiert eine Integralgleichung der Form

$$G(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) = C(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) + n \int d\vec{r} C(\vec{r}_1 - \vec{r}) G(\vec{r} - \vec{r}_2), \quad (2.20)$$

die symbolisch etwa folgendermaßen darzustellen wäre:



Um Gleichung (2.20) näherungsweise zu lösen, machten Ornstein und Zernike eine sehr wesentliche Annahme: Danach sollte die direkte Korrelation $C(\vec{r})$ in einer solchen Weise kurzreichweitig bleiben, (bzw. wesentlich schwächer anwachsen als $G(\vec{r})$; obwohl das System sich seinem kritischen Punkt annähert), daß es zulässig sei, die Fouriertransformierte $\tilde{C}(\vec{q})$ nach q^2 zu entwickeln. Die Nützlichkeit dieses Gedankenganges wird verständlich, wenn man die fouriertransformierte Form der Integralgleichung (2.20) betrachtet, die in der Schreibweise von Fisher /23/ lautet

$$1 + n \tilde{G}(\vec{q}) = \frac{1}{1 - n \tilde{C}(\vec{q})} \quad (2.21)$$

In diesem Ausdruck hängt die Fouriertransformierte der Gesamtkorrelation $\tilde{G}(\vec{q})$ in einfacher Weise nur noch von der Fourier-

transformierten der direkten Korrelation $\tilde{C}(\vec{q})$ ab. Mit der Reihenentwicklung von $\tilde{C}(\vec{q})$ ist daher ein Lösungsansatz für $\tilde{G}(\vec{q})$ möglich. Ausführlich geschrieben lautet die Entwicklung

$$1 - n \tilde{C}(\vec{q}) = 1 - n \left\{ \tilde{C}(0) + c(n, T) q^2 + \dots \right\} \quad (2.22)$$

Mit den Abkürzungen

$$R^2 = -nc(n, T) \quad \text{und}$$

$$K^2 = \frac{1}{R^2} (1 - n \tilde{C}(0))$$

ergibt das die Näherungslösung

$$1 - n \tilde{C}(\vec{q}) = R^2 (K^2 + q^2) \quad (2.23)$$

Rückwärts folgt über die Gleichungen (2.21) und (2.19) das endgültige Resultat, mit dem die Streuintensität durch eine Lorentzfunktion des Streuvektors beschrieben wird.

$$\chi(\vec{q}) \equiv \frac{I(\vec{q})}{I_0(\vec{q})} = \frac{1}{R^2 (K^2 + q^2)} \quad (2.24)$$

Nach /23/ liefert die Rücktransformation von Gleichung (2.24) nun auch eine Lösung für die Korrelationsfunktion im dreidimensionalen Raum

$$G(\vec{r}) \approx \frac{1}{4\pi n R^2} \frac{e^{-Kr}}{r}, \quad \text{für } r \rightarrow \infty \quad (2.25)$$

Mit diesem Ausdruck läßt sich K anschaulich interpretieren als reziproke Korrelationslänge

$$\xi^{-1} = K$$

Weiterhin wird damit über das Potenzgesetz der Korrelationslänge das Temperaturverhalten der Streuintensität beschrieben. Allerdings ist dies nur in erster Näherung so einfach. Bei genauerer Betrachtung muß die Temperaturabhängigkeit des Parameters R berücksichtigt werden, die aber im Rahmen der oben skizzierten Theorie nicht explizit zu ermitteln ist. Stanley /1/ argumentiert, daß es sich nur um eine schwache Abhängigkeit handeln kann, denn R ist mit der direkten Korrelation $C(\vec{r})$ verknüpft, und diese sollte nach Voraussetzung bei T_c nicht divergieren. In /26/ ist als Ergebnis einer Molekularfeldnäherung eine ebenfalls relativ schwache Temperaturabhängigkeit angegeben mit

$$R \propto \left(\frac{T}{T_c} \right)^{\frac{1}{2}} . \quad (2.26)$$

In der gleichen Arbeit /26/ wird auch die Bedeutung des Exponenten η dargestellt. Durch η werden die angeführten Ergebnisse der Ornstein-Zernike-Näherung modifiziert zu

$$\frac{I(\vec{q})}{I_0(\vec{q})} = \frac{1}{R^2 (\kappa^2 + q^2)^{1-\eta/2}} , \quad (2.27)$$

und

$$G(\vec{r}) \propto \frac{e^{-\kappa r}}{r^{1+\eta}} . \quad (2.28)$$

Eine eingehende Diskussion zu dem Fisher-Parameter η wird in der Arbeit von Anders /27/ durchgeführt. Dort ist ebenfalls ein durch Messung ermittelter Wert $\eta = 0,041 \pm 0,009$ angegeben.

Schließlich kann noch eine andere Form für Gleichung (2.24) angeführt werden, die in der Näherung $\eta = 0$ möglich wird /42/.

Über die Skalenrelation $\gamma \approx 2\nu$ und

$$K^{-2} = \xi^{+2} \propto \tau^{-2\nu} \propto \tau^{-\gamma} \propto \chi_{(q=0)}$$

folgt

$$\chi(\vec{q}) \equiv \frac{I(\vec{q})}{I_0(\vec{q})} = \frac{\chi_{(q=0)}}{R^2 (1 + \xi^2 q^2)} \quad . \quad (2.29)$$

2.4 Magnetische Neutronenstreuung

Zum Abschluß der theoretischen Betrachtungen soll noch kurz der Wechselwirkungsmechanismus zwischen Neutronenspin und magnetischem Moment der Probe angedeutet werden, da dessen Auswirkungen bei richtungsabhängiger Analyse von Streufiguren beachtet werden müssen.

Für den magnetischen Anteil des differentiellen Streuquerschnittes gilt nach /28/

$$\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega} \propto (\vec{q}_\perp \cdot \vec{p})^2, \quad (2.30)$$

mit

$$\begin{aligned} \vec{p} &: \text{Einheitsvektor des Neutronenspins,} \\ \vec{q}_\perp &: \text{Magnetischer Wechselwirkungsvektor.} \end{aligned}$$

$\vec{q}_\perp$ ist abzuleiten aus der Wechselwirkungsgleichung für zwei magnetische Dipole, und wird mit den in Abb. 2.3 gegebenen Größen (Doppelpfeil bedeutet Einheitsvektor) definiert als

$$\vec{q}_\perp = \vec{q} (\vec{q} \cdot \vec{m}) - \vec{m}, \quad (2.31)$$

und

$$q_\perp \propto \sin \alpha. \quad (2.32)$$

Die letzte Gleichung nennt in kürzester Form das wesentliche Ergebnis: Die magnetische Streuintensität beträgt Null, wenn geometrischer Streuvektor und Richtung des magnetischen Moments parallel stehen, und wird maximal bei rechtwinkliger Orientierung derselben. (Es soll nur ein unpolarisierter Strahl betrachtet werden.)

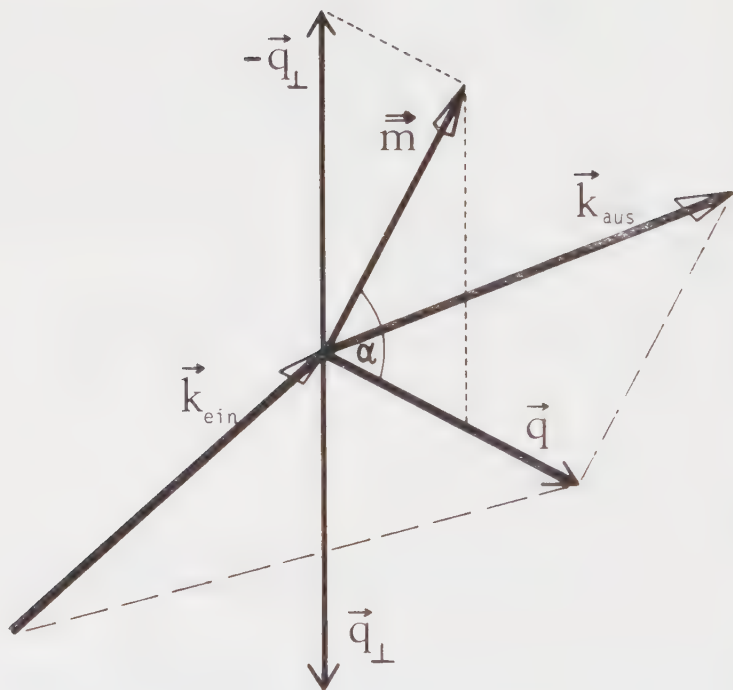


Abb. 2.3: Schema zur Wechselwirkung von Neutronenspin und magnetischem Moment der Probe.

- $\vec{m}$: Einheitsvektor des magnetischen Moments des Targetteilchens,
- $\vec{q}$: Streuvektor $\vec{q} = \vec{k}_{\text{aus}} - \vec{k}_{\text{ein}}$,
- $\vec{q}_\perp$: Magnetischer Wechselwirkungsvektor.

3. EXPERIMENTELLER AUFBAU

3.1. Proben

Die Messungen wurden an zwei Nickel-Einkristallen mit zylindrischer Form und folgenden Dimensionen durchgeführt:

Tab. 3.1: Probenabmessungen

Orientierung der Längsachse	Länge	Durchmesser	Bemerkungen	Experimente
$\langle 111 \rangle$	30 mm	5,5 mm	--	Druck
$\langle 100 \rangle$	39 mm	6,2 mm	umlaufende Kerben an den Enden	Zug und Druck

Die Kristalle waren von der Firma Materials Research Corporation nach der Czochalski-Methode gezogen und ihre Reinheit mit 99,997% angegeben. Die ungleichmäßig geformten Rohlinge wurden durch Funkenerosion auf gleichmäßigen Durchmesser (Schwankungen danach kleiner $\pm 3/100$ mm) abgeschmolzen, die Oberflächen dann durch chemisches Ätzen geglättet. Anschließend wurden die Kristalle unter H_2 -Gasstrom 48 h bei 1450 K getempert, danach im Verlauf von 7 Tagen allmählich abgekühlt.

Orientierung und Oberflächenbeschaffenheit wurden durch Laue-Aufnahmen kontrolliert. In Bezug auf ihre Volumen-Kristallgittergüte wurden die Proben durch Rocking-Kurven /29/ am γ -Diffraktometer des ILL Grenoble geprüft. Die Rocking-Kurven, schrittweise

über die gesamte Länge und in verschiedenen Drehwinkeln um die Längsachse aufgenommen, zeigten einfache symmetrische Profile mit vollen Halbwertsbreiten kleiner als 2 Winkelminuten. Zu den Enden der Kristalle verbreiterten sich die Reflexe bis maximal zum doppelten Wert.

Als eine der Kontrollen dafür, daß die Experimente im elastischen Spannungsbereich geblieben waren, wurden die Rocking-Kurven nach den Neutronenstreuungsmessungen erneut aufgenommen, und ihre Werte mit Abweichungen von höchstens 20% wieder erhalten. Das entspricht praktisch einer Reproduktion der alten Werte, da nach einem Aus- und Einbau in die γ -Streuapparaturnicht exakt die gleichen Durchstrahlungspositionen eingehalten werden können.

3.2. Apparatur

3.2.1. Allgemeines

Die Abb. 3.1 und 3.2 geben einen Gesamtüberblick der Meßanordnung und des Aufbaus des Rezipienten. Die Prinzipien für die Konstruktion eines mit hoher Genauigkeit temperaturregelbaren Ofens sind in vorangegangenen Arbeiten /30,31/ eingehend beschrieben worden.

Ein wesentliches Charakteristikum der hier durchgeführten Experimente ist das schrittweise Durchfahren des kritischen Temperaturbereiches. Dabei muß nach jeder Temperatureinstellung erneut thermisches Gleichgewicht abgewartet werden, das jeweils mit der Stabilisierung der Meßgröße erreicht ist. Für die Schrittfolge der Temperaturwerte ist $0,03 \text{ K}/20 \text{ min}$ eine typische Größe. Angesichts der damit sehr langdauernden Meßreihen wurde eine mikroprozessorgesteuerte Temperaturschaltung und Meßwerterfassung eingerichtet, die neben dem automatischen Ablauf noch den Vorteil exakt gleichartig ablaufender Meßzyklen erbrachte.

Zur statischen Magnetfeldabschirmung wurden mehrere Lagen Mu-Metall außen um den Rezipienten gelegt. Zusammen mit einer einfachen Helmholtzspule für die verbleibende vertikale Störfeldkomponente wurde so das Restfeld im Probenraum für alle Richtungen auf Werte kleiner 10^{-1} A/m kompensiert.

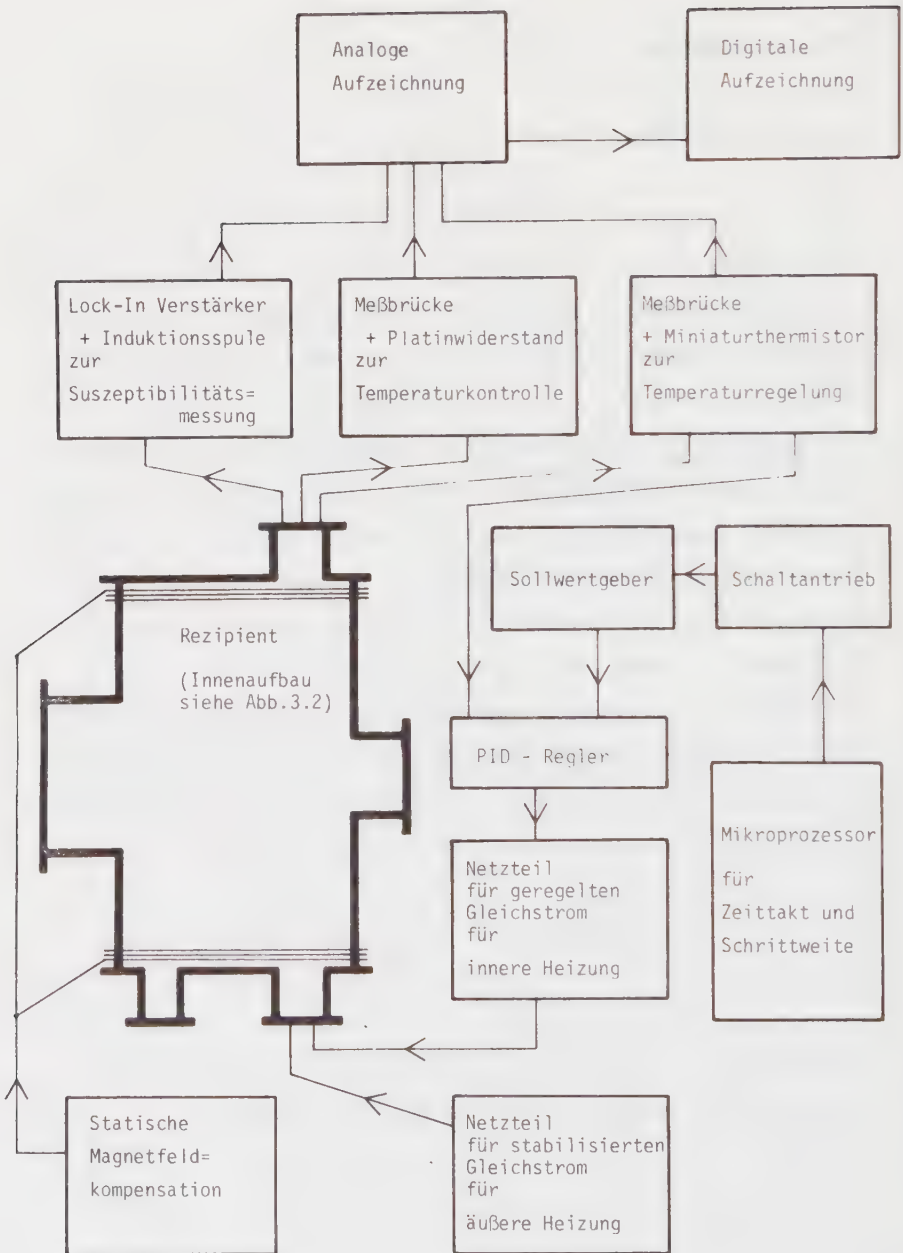


Abb. 3.1: Schema des Meßaufbaus.

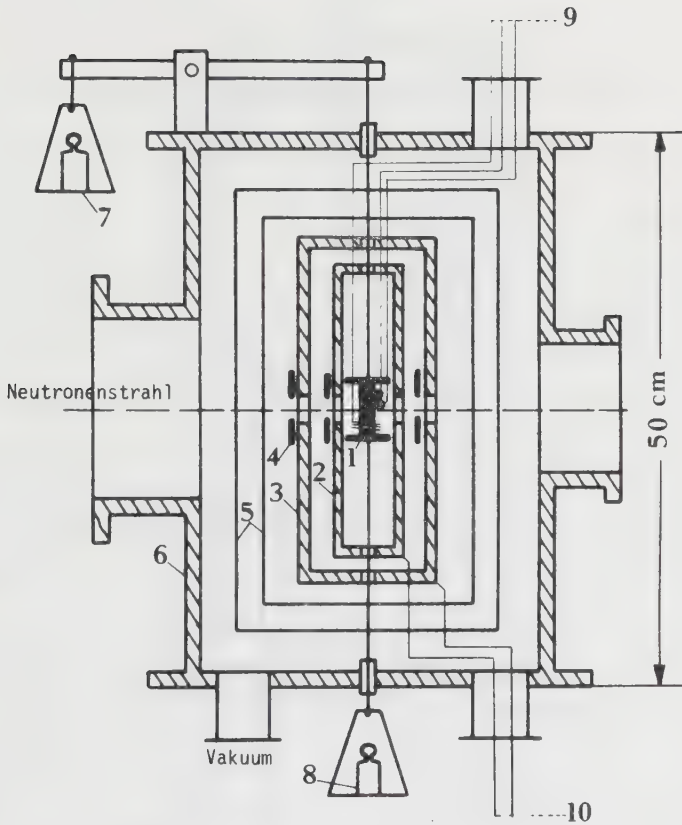


Abb. 3.2: Schematischer Schnitt durch den Rezipienten,
mit

- 1: Probe,
- 2: Inneres Al-Heizrohr,
- 3: Äußeres Al-Heizrohr,
- 4: BNO_3 -Blenden,
- 5: 2 Cu-Wärmeschutzzyliner,
- 6: Rezipient,
- 7: Masse für Zugbelastung,
- 8: Masse für Druckbelastung,
- 9 und 10: Elektrische Zuleitungen zur
Probe bzw. Ofenheizung.

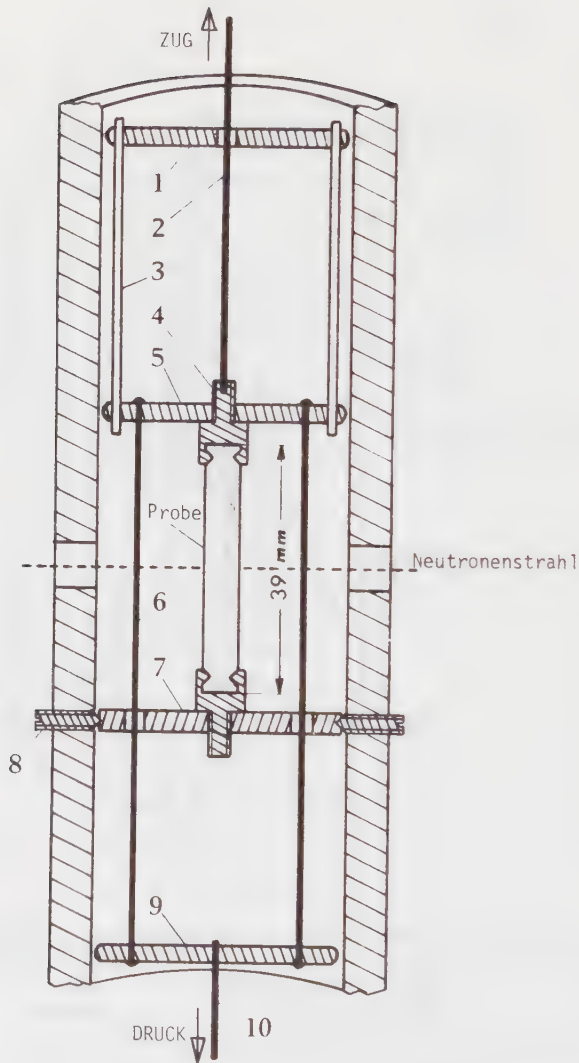


Abb. 3.3: Einbau der Probe im inneren Heizrohr,
mit

- 1: Haltekreuz, Al, (im seitlichen Schnitt),
- 2: Oberer Zugdraht, VA unmagnetisch,
- 3: 4 Stützstäbe,
- 4: Kristallfassungen, Cu, (Details in Abb. 3.4),
- 5: Oberes Haltekreuz, Al,
- 6: 4 Hilfsdrähte,
- 7: Unteres Haltekreuz, VA,
- 8: Feststellschrauben,
- 9: Druckteller,
- 10: Unterer Zugdraht.

3.2.2. Probenhalterung

Die Probenhalterung wurde so konzipiert, daß im geheizten Zustand ohne mechanischen Umbau wahlweise Druck- oder Zugspannung in Längsrichtung des Einkristalls angelegt werden konnte. In Abb. 3.3 ist der Aufbau skizziert. Das untere Haltekreuz (7) mit der eingeschaubten Kristallfassung war in der Ofenwand fest eingespannt. Das obere Haltekreuz (5) blieb in vertikaler Richtung beweglich. Zugspannung wurde ausgeübt durch direkten Zug nach oben am Draht (2), der durch eine Vakuumdrehdurchführung aus dem Rezipienten herausführte. Zug nach unten am Draht (10) hingegen bewirkte Druckspannung, indem die Zugkraft über einen Zwischenteller und vier Hilfsdrähte (9 und 6) auf die obere Kristallfassung geleitet wurde. Um dabei ein Verkippen des oberen Haltekreuzes und ungleichmäßigen Druck auf die Kristallstirnfläche zu verhindern, wurde das obere Haltekreuz durch eine Verlängerung aus vier Achsen (3) und einem identischen Haltekreuz (1) als oberem Abschluß stabilisiert.

Verschiedene Gründe sprechen dafür, in den Experimenten Kristalle mit möglichst großer Länge gegenüber ihrem Durchmesser zu verwenden. Zugleich war im Hinblick auf günstigen Wirkungsgrad bei der Neutronenstreuung bereits ein optimaler Durchmesser der Proben von ungefähr 5 mm vorgegeben (siehe Kap. 5.3).

Größere Länge bedeutet kleineren Entmagnetisierungsfaktor der Probe, geringeren Temperaturgradienten in Längsrichtung im mittleren Bereich, und weniger Störeinflüsse durch die Endfassungen

auf das mittlere Meßvolumen. Dem steht jedoch bei einem Experiment, das neben Zug- auch Druckspannung zulassen soll, die Gefahr der Durchbiegung gegenüber. Als Mittelweg wurde deshalb ein Verhältnis Länge zu Durchmesser von 6 gewählt. Optische Kontrolle nach den Experimenten zeigte, daß innerhalb einer Meßgenauigkeit von 1/100 mm keine Durchbiegung festzustellen war. Ebenso weist die Messung der Rocking-Kurven darauf hin, daß Versetzungen durch Verbiegen nicht in meßbarem Umfang entstanden sein können.

Bei der relativ geringen Länge der Kristalle wurde statt einer Klemmeinfassung an den Enden einer Einspannung der Vorzug gegeben, bei der (primär) keine seitlichen Kräfte auftreten. Wie in Abb. 3.4 schematisch gezeichnet ist, greifen dazu zwei Halbschalen (6) mit genau passender Schneide in eine umlaufende Kerbe an den Enden des Kristalls. Die Schalen werden durch eine Hülse (8) und einen Stift (7) zusammengehalten und mit dem Haltekreuz verbunden.

3.2.3. Temperaturregelung und -gradient

Im allgemeinen wurde die Temperatur mit einem Miniaturthermistor (der den Vorteil minimaler thermischer Trägheit hat) geregelt, und mit einem 100 Ohm Platinwiderstandsfühler kontrolliert. Beide befanden sich an der Oberfläche der Probe in Berührungskontakt. Der Thermistor, in einer Glasperle von 1 mm Durchmesser eingeschmolzen, war nicht an den Kristall angeklebt, weil sich dadurch seine thermische Trägheit bereits merklich erhöht hätte. Der Platinfühler dagegen war durch Keramikkleber mit dem Kristall verbunden.

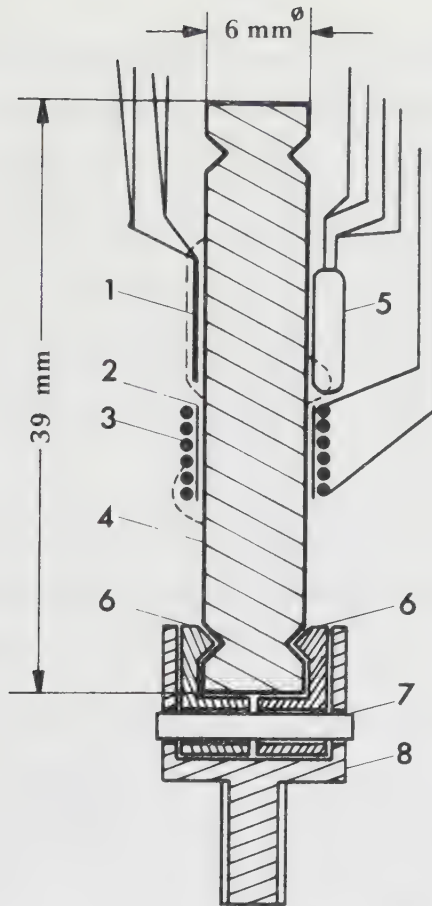


Abb. 3.4: Einkristall mit einer Fassung und Meßfühlern im Aufbau für Suszeptibilitätsmessungen. Bei Neutronenstreuungsmessungen war ein mittlerer Bereich von 6 mm Breite für Neutronendurchtritt frei. Gestrichelte Linien sollen die Fixierung der Meßfühler durch Keramik-Kleber andeuten.

- 1: Dehnungsmeßstreifen,
- 2: Kapton-Folie,
- 3: Induktionsspule,
- 4: Nickel-Einkristall
- 5: Platin-Miniaturwiderstand 100 Ohm, (daneben ein nicht gezeichneter Miniaturthermistor),
- 6: 2 Halbschalen,
- 7: Stift,
- 8: Hülse mit Gewindezapfen.

In Vorexperimenten war die Frage nach dem Temperaturgradienten entlang der Probe, und nach dem Regelverhalten verschiedener Halterungen untersucht worden. In der endgültigen Konfiguration betrug der Temperaturgradient im mittleren Meßbereich der Probe über 5 mm Länge $0,003 \text{ K/mm}$. Insgesamt hatte sich herausgestellt, daß der Gradient kaum beeinflußt wurde von der Art und Weise, wie die Ofenwände geheizt wurden (mit zusätzlicher Deckelheizung, oder variabel in den Endbereichen). Er war jedoch ausgeprägt von der Länge der Probe und der Art der Halterung im Heizrohr abhängig.

Für eine Halterung des Kristalls zwischen zwei Aluminiumtellern, die in Kontakt mit der Ofenwand stehen, ergibt sich aus überschlägiger Rechnung, daß Wärmeleitung über diese Teller und Wärmestrahlung von der Heizrohrinnenfläche von gleicher Größenordnung sind. Im praktischen Versuch zeigte sich, daß dies nicht die optimale Situation für den Temperaturregelkreis war. Besseres Regelverhalten ergab sich, wenn die Wärmeleitung klein war gegen die Wärmestrahlung, wenn also die Halterung möglichst klein in ihren Abmessungen mit wenig Kontaktflächen zur Ofenwand konstruiert wurde.

Ein anderer wichtiger Gesichtspunkt für gute Regelstabilität war die Anzahl, bzw. der Gesamtquerschnitt der Meßzuleitungen zum Kristall (zu Temperaturfühlern, Spulen, Dehnungsmeßstreifen). Bei den Messungen zur Curiepunktsverschiebung war Reproduzierbarkeit der Temperaturwerte über alle Meßzyklen hin notwendig. Dies konnte nur mit Vierleitorschaltung zu allen Meßfühlern realisiert werden. Durch diese Vergrößerung des wärmeleitenden

Querschnitts (gegenüber Zweileiterzuführungen) vom Probenkristall zum Außenraum erhöhten sich die Regelschwankungen bis zum Dreifachen des optimal möglichen Wertes von ± 1 mK/24 h.

3.2.4. Druck- und Zugspannung

Druck- und Zugspannung wurde durch Anhängen entsprechender Massen an einen der beiden Zugdrähte (Abb. 3.3 und 3.2) ausgeübt. Da jeder Zugdraht durch eine Vakuumdrehdurchführung mit bestimmtem Reibungswiderstand geleitet wurde, konnten Spannungen erst oberhalb einer Schwelle von $0,1 \text{ N/mm}^2$ (hier etwa einer Masse von 300 g entsprechend) reproduzierbar angelegt werden. Zur Kontrolle diente ein am Kristall applizierter Hochtemperatur-Dehnungsmeßstreifen (DMS).

Die Verwendung eines DMS im hier untersuchten Temperaturbereich ist offenbar nicht sehr gebräuchlich, da kaum Unterlagen dazu existieren. So zeigte sich unerwartet ein ausgeprägter Alterungseffekt des DMS. Nach 15 Tagen anfänglicher Heizdauer des Rezipienten lag die Zunahme des Widerstandes des DMS während der weiteren Meßzeit bei $+(0,19 \pm 0,01) \cdot 10^{-3} \text{ Ohm/h}$. Diese Langzeitdrift schränkte aber nicht die gewünschte Kontrollfunktion ein.

Zu dieser Drift addiert sich die gemessene Temperaturabhängigkeit des DMS von $(0,034 \pm 0,002) \text{ Ohm/K}$, ein relativ großer Wert im Vergleich zu der erforderlichen hohen Genauigkeit bei der Dehnungsmessung. Die Empfindlichkeit des DMS für die Spannungsmessung ergab sich experimentell zu $(2,80 \pm 0,04) \cdot 10^{-3} \text{ Ohm/N/mm}^2$.

4. SUSZEPTIBILITÄTSMESSUNGEN

Die Suszeptibilitätsmessungen mittels Induktionsmethode waren ursprünglich zur Ergänzung der Curiepunktsbestimmung aus den Neutronenstreuemessungen gedacht. Angesichts der notwendigen systematischen Korrekturen der χ -Meßkurven wäre nämlich die Neutronenkleinwinkelstreuung *à priori* die genauere Methode zur Bestimmung der tatsächlichen Curietemperatur der Einkristalle. Aber einerseits erforderte die gründliche Untersuchung von Curiepunktverschiebungen lange Meßreihen, die mehrere Wochen dauerten. Bei diesem Zeitbedarf war die Verwendung von Neutronen etwa am Instrument D11 des ILL Grenoble ausgeschlossen. Andererseits stellte sich heraus, daß die Induktionsmethode nach genauerer Analyse der systematischen Fehler dennoch gut geeignet war zur Ermittlung relativer T_C -Verschiebungen.

So ergaben schließlich die Suszeptibilitätsmessungen die ersten zuverlässigen Informationen zur Curiepunktverschiebung unter einachsiger Zug- und Druckspannung. Im folgenden Abschnitt werden das Verfahren, die Auswertung und das Ergebnis dieser Experimente beschrieben.

4.1. Induktionsmethode

Bei der hier verwendeten Methode werden Betrag und Phasenlage der an einer Spule um den Probenkern abfallenden Wechselspannung gemessen. Als phasenempfindliches Voltmeter dient ein Lock-In-Verstärker. Das Verfahren ist mittlerweile weitgehend verbreitet.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde es jedoch zu hoher Genauigkeit bei gleichzeitig verringertem mechanischen und elektrischen Aufwand weiterentwickelt. Wesentlich dafür war der Nachweis, daß die gebräuchliche Empfindlichkeitssteigerung durch höhere Windungszahlen der Meßspule besser und bequemer erreicht werden kann mit der Anordnung zweier gegensinnig geschalteter Meßspulen, von denen eine als Kern den Probenkörper enthält - und daß bei sorgfältigem symmetrischen Aufbau nur noch einlagige Spulen benötigt werden. Das bedeutet große Vorteile für den Einsatz in einem Hochtemperaturofen: Es müssen nicht mehrere Windungslagen der Spulen gegenseitig isoliert werden, und es sind keine voluminösen Spulen um den Kristall gewickelt, die das Temperaturprofil stark verzerren.

Die Methode erwies sich als besonders erfolgreich bei der Messung superparamagnetischer und paramagnetischer Suszeptibilitäten. Für die Messung des vergleichsweise großen Signals bei einem Nickelkern war schließlich bei sehr sorgfältiger Stabilisierung aller elektrischen Komponenten sogar eine Einzelspulenmessung ausreichend empfindlich. Die eine Spule bestand nur noch aus 10 Windungen von 0,2 mm dünnem Cu-Draht, der über eine Kaptonfolie direkt auf den Kristall gewickelt wurde (Abb. 3.4).

Der elektrische Schaltkreis ist in Abb. 4.1 angegeben. Ein Sinusgenerator speist über einen im Vergleich zur Spulenimpedanz (ca. 1 Ohm) großen Vorwiderstand ($R > 10 \text{ kOhm}$) den Wechselstrom ein. Wegen des großen Vorwiderstandes können die Änderungen des Stromes I aufgrund der Impedanzänderung von Spule und Kern (ca. + 1 Ohm) vernachlässigt werden. I kann als eingeprägte Größe angesehen werden.

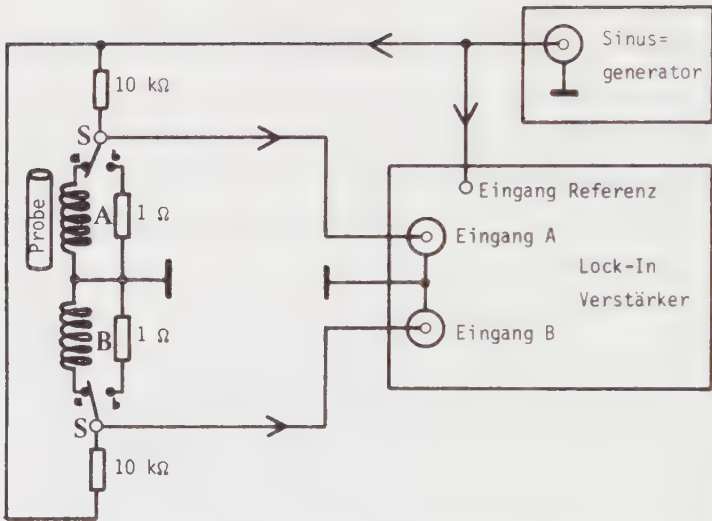


Abb. 4.1: Schaltbild zur Suszeptibilitätsmessung.

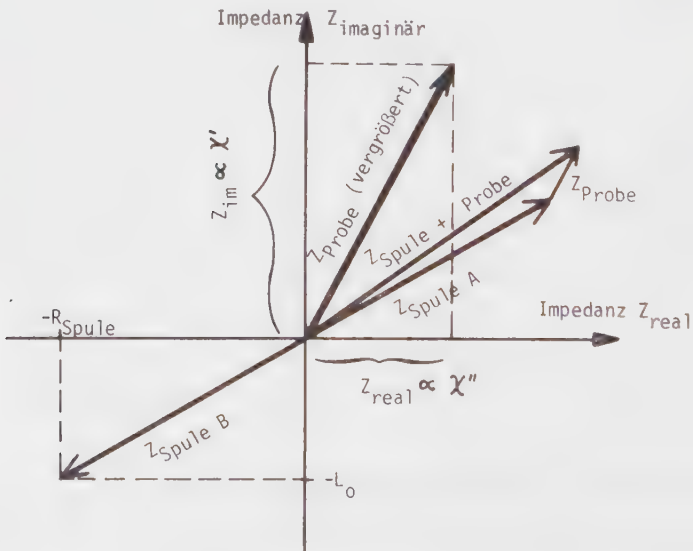


Abb. 4.2: Zeigerdiagramm zum oben angeführten Schaltbild.

Der Spannungsabfall an der Spule ist dann direkt proportional der Impedanzänderung der Spule mit Kern. In Stellung b des Schalters S wird dem Lock-In-Verstärker als Referenz die Phasenlage einer Spannung an einer rein ohmschen Impedanz eingegeben. Anhand dieses Eichpunktes für den Phasenwinkel kann dann in Stellung a des Schalters S die Spulenimpedanz bezüglich ihrer ohmschen und ihrer induktiven Komponente gemessen werden. Abb. 4.2 gibt schematisch das zugehörige Zeigerdiagramm an.

Wie an anderer Stelle /32,33/ schon ausführlich dargestellt wurde, gelten folgende Beziehungen zwischen Real- und Imaginärteil der Suszeptibilität χ der Probe und den Meßgrößen beim hier verwendeten Verfahren, für den Fall einer Einzelspulenmessung:

$$\text{Realteil} \quad \chi' = \mu' - 1 = \frac{L}{L_0} - 1, \quad (4.1)$$

$$\begin{aligned} \text{Imaginärteil} \quad \chi'' = \mu'' &= (R - R_{\text{Spule}}) / \omega L_0 \\ &= R_{\text{Probe}} / \omega L_0, \end{aligned} \quad (4.2)$$

mit

- μ : Permeabilität,
- L : Induktiver Anteil der Impedanz,
- L_0 : Leerinduktivität der Spule,
- R : Ohmscher Anteil der Impedanz,
- R_{Spule} : Gleichstromwiderstand der Spule,
- R_{Probe} : Wechselstromverlustwiderstand der Probe,
- $\omega/2\pi$: Meßfrequenz.

Der für die Messungen verwendbare Frequenzbereich ist praktisch durch den von 20 Hz bis 20 kHz reichenden Arbeitsbereich des Lock-In-Verstärkers gegeben, wobei nur die in Kap. 4.2. diskutierten Abhängigkeiten der Meßgrößen von der Frequenz beachtet werden müssen.

Die Meßfeldstärke ist mit maximal 0,3 A/m so klein, daß mit Sicherheit im Gültigkeitsbereich des Rayleigh-Gesetzes gearbeitet wird /32/. (Der Nachweis ist dadurch gegeben, daß bis zum fünffachen Wert der Meßfeldstärke die gemessene Anfangssuszeptibilität linear mit der Feldstärke anwächst.)

4.2. Auswertung der Suszeptibilitätsmessungen

Die χ' -Messungen hatten nicht zum Ziel, kritische Exponenten, oder etwa die absolute Lage des Curiepunktes zu ermitteln. Eine Wechselstrom-Induktionsmessung an einer massiven Nickelprobe stellt dafür keine besonders geeignete Methode dar, weil die Wirbelstromverdrängung und -dämpfung, sowie die suszeptibilitätsabhängige Entmagnetisierung berücksichtigt werden müssen. Beide Probleme sind auf elegante Weise von Herzum u.a. /32,10/ umgangen worden, indem dort eine toroidförmige Probe aus geschichteten Folien verwendet wurde. In jenen Arbeiten sind der kritische Exponent γ und die nichtuniversellen Amplituden χ'_0 und χ''_0 für Nickel bestimmt worden. In Anlehnung daran sollen für die vorliegenden Messungen γ und χ'_0 als bekannt vorausgesetzt werden. Damit bietet sich die Möglichkeit, eine Korrektur der Meßwerte bezüglich Entmagnetisierung und Eindringtiefe des Wechselfeldes auf ihre Wirksamkeit zu überprüfen. Im folgenden ergibt sich schon bei minimaler Korrektur eine erstaunlich gute Übereinstimmung der Meßkurven mit dem Potenzgesetz für χ . Es wird so zum einen gezeigt, daß aus den Meßdaten, die als direkte Meßwerte nur eine schwach ausgeprägte kritische Divergenz aufweisen, dennoch in üblicher Weise durch eine Fitprozedur eine kritische Temperatur T_c bestimmt werden kann. Zum anderen wird damit die diesen Experimenten zugrundeliegende Annahme gerechtfertigt, nämlich daß aus der Parallelverschiebung der $\chi'(T)$ -Kurven in Abhängigkeit von ϕ unmittelbar eine T_c -Verschiebung abgelesen werden kann.

Die in Kap. 4.1. angegebenen Beziehungen für die Suszeptibilität gelten für eine toroidförmige oder eine unendlich lange zylinderförmige Probe (Entmagnetisierungsfaktor $N = 0$) aus nichtleitender Substanz, wenn die Meßspule sich über die Gesamtlänge der Probe erstreckt. Dann wäre der Feldverlauf in Probe und Meßspule annähernd homogen. Die Abweichungen von einem homogenen Feld sollen qualitativ in zwei folgenden Kapiteln behandelt werden.

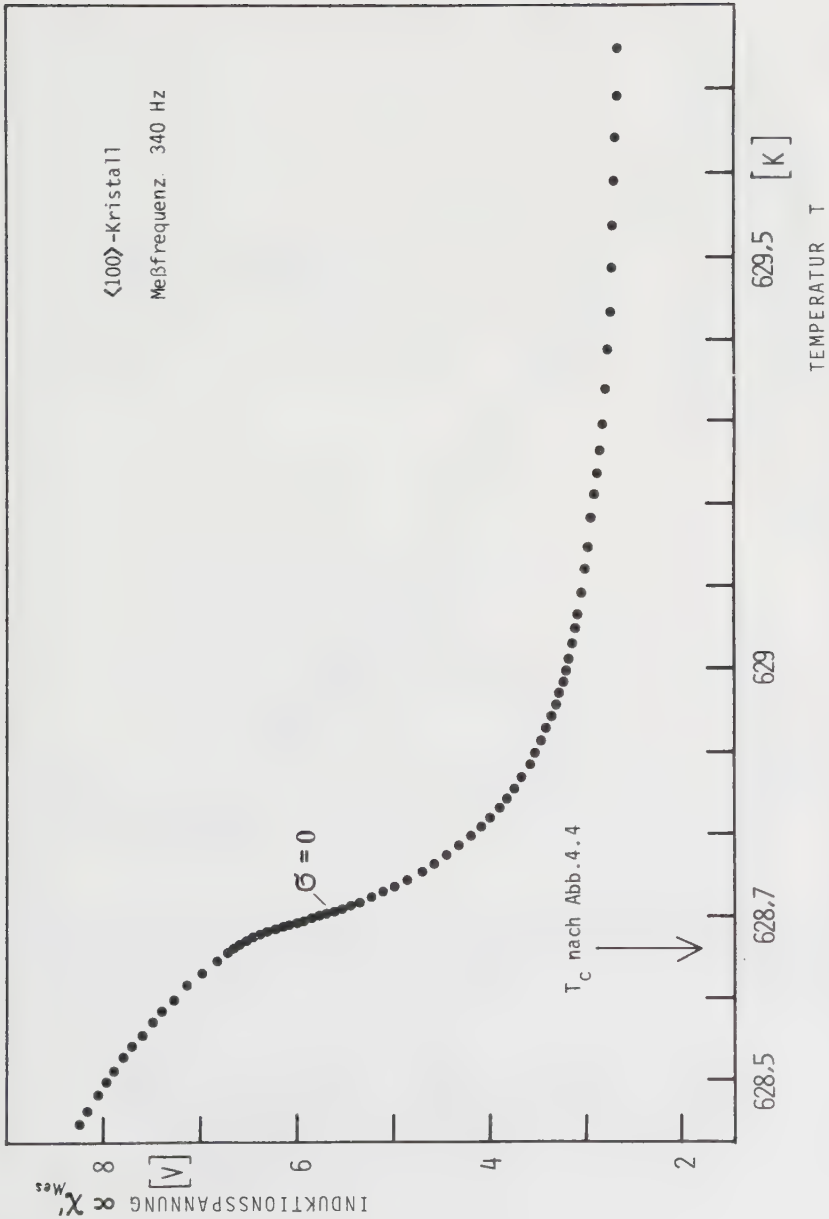
4.2.1. Abschwächung der Suszeptibilität durch entmagnetisierendes Feld

Solange die Eindringtiefe des Meßfeldes noch größer ist als der Radius der Probe, muß die gemessene Suszeptibilität χ_{Mes} nur um den Einfluß des entmagnetisierenden Feldes korrigiert werden. Daraus ergibt sich die wahre Suszeptibilität χ_{wahr} . Nach Bozorth /34/ ist für einen Zylinder mit der Permeabilität $\mu = \infty$ und dem Achsenverhältnis $m = 6,3$, $N = 0,03$ und

$$\chi_{\text{wahr}} = \frac{\chi_{\text{Mes}}}{1 - N \chi_{\text{Mes}}} \quad (4.3)$$

Bozorth zeigt auch, daß die Abhängigkeit des Wertes N vom Betrag der Permeabilität nur gering ist.

Die entsprechend der Gleichung (4.3) durchgeführte Korrektur der Meßdaten aus Abb. 4.3 ergibt bereits die gute Übereinstimmung mit dem Potenzgesetz $\chi = \text{const.} \cdot \tau^{-x}$, wie sie durch Abb. 4.4 demonstriert wird.



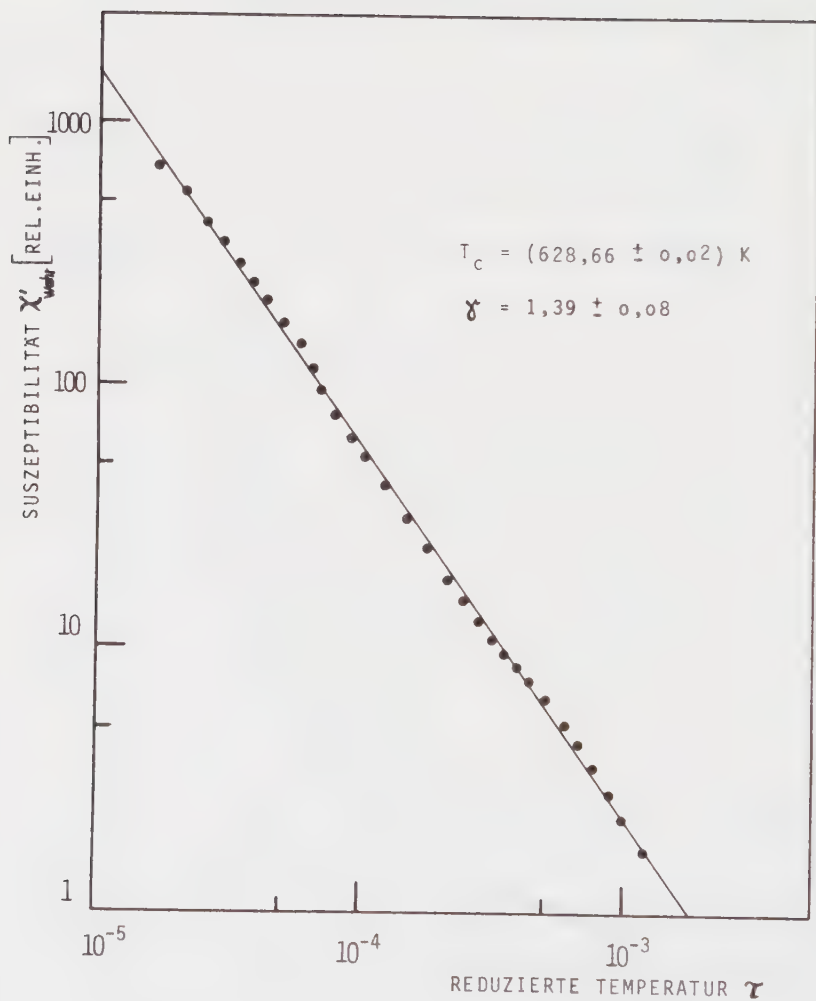


Abb. 4.4: Doppeltlogarithmische Darstellung der Meßdaten aus Abb.4.3, mit eingezeichneter numerischer Fitgeraden. Korrektur der Meßdaten wie in Kap. 4.2.1. beschrieben.

4.2.2. Eindringtiefe des Wechselfeldes

Bittel /35/ berechnete die Abnahme der Feldamplitude von der Oberfläche zur Mittelachse für eine leitende zylinderförmige Probe. Die exakten Ergebnisse sind jedoch zu komplex für eine einfache Abschätzung. Einen hier ausreichenden Anhaltspunkt liefert ein Zwischenergebnis für die Eindringtiefe d , die formal definiert ist als die Schichtdicke d , in der im Falle einer unendlich ausgedehnten ebenen Platte die Feldamplitude A auf A/e abfällt:

$$d = (2 \varrho / \mu_0 \mu_{rel} \omega)^{1/2}, \quad (4.4)$$

mit

$\omega / 2\pi$: Meßfrequenz,

μ_{rel} : Relative Permeabilität,

$\mu_0 = 1,26 \cdot 10^{-6}$ Vs/Am,

ϱ : Elektrischer Widerstand $\varrho \approx 30 \cdot 10^{-6}$ Ohm·cm.

ϱ wird als konstant betrachtet, da die Änderung im Intervall $T - T_c = 1K$ bis zum Curiepunkt, entsprechend $\tau \approx 10^{-3}$, mit $\Delta \varrho \approx 1 \cdot 10^{-7}$ /36/ vernachlässigbar klein ist.

Aus Gleichung (4.3) folgt mit $N=0,03$ und der wahren Permeabilität $\mu = \infty$ bei T_c eine maximal meßbare relative Permeabilität $\mu_{rel}=33,3$. Die Darstellung der Beziehung (4.4) in Abb. 4.5 zeigt, daß dann bei der benutzten Meßfrequenz von 340 Hz die Eindringtiefe mit $d \approx 2,7$ mm noch knapp bis zur Probenmitte reicht.

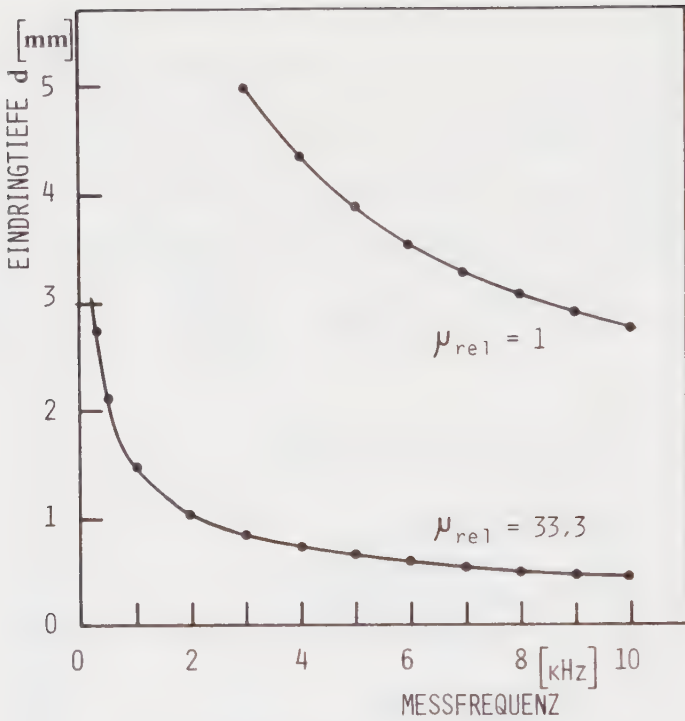


Abb. 4.5: Eindringtiefe d (siehe Text) eines Wechselfeldes in elektrisch leitender Probe, abhängig von Frequenz und Permeabilität μ_{rel} .

4.3. Meßablauf

Gemessen wurde der Realteil χ' der Suszeptibilität an dem $\langle 100 \rangle$ -orientierten Kristall bei schrittweise veränderter einachsiger Zug- und Druckspannung σ . Alle Suszeptibilitätskurven $\chi'(T, \sigma)$ waren zueinander deckungsgleich, abgesehen von ihrer geringen Verschiebung auf der Temperaturachse infolge veränderter Spannungsbelastung des Kristalls. In Abb. 4.3 war als Beispiel die Meßkurve für den Kristall ohne Belastung wiedergegeben (Seite 43). Die entsprechenden Kurven für verschiedene Spannungen am Kristall unterscheiden sich bei dem verwendeten Temperaturmaßstab der Abb. 4.3 praktisch nicht von der eingezeichneten Meßkurve.

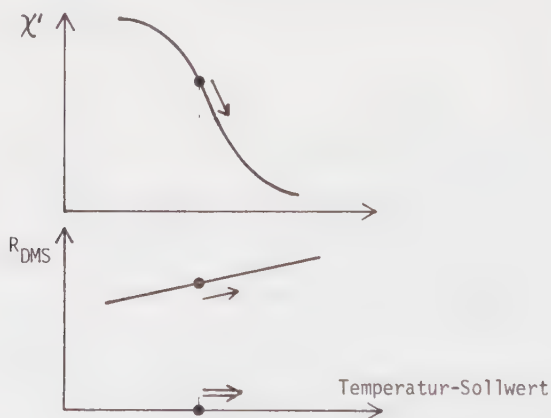
Mit der Meßreihe von kompletten $\chi'(T)$ -Kurven bei verschiedenen Belastungen σ sollte sichergestellt werden, daß keine systematischen Abweichungen in der Kurvenform in Abhängigkeit von σ auftraten. Die gegenseitige minimale Verschiebung der $\chi'(T)$ -Kurven¹⁾ war aber wegen der langen Meßdauer für jede einzelne Kurve (Zeitabstand der Meßpunkte in Abb. 4.3: 30 min) nicht mit ausreichender Genauigkeit reproduzierbar. Dies wurde erst erreicht mit einem veränderten Verfahren:

Dazu wurde die Probentemperatur auf einen bestimmten Wert oberhalb T_c fest eingestellt, entsprechend einem mittleren χ' -Wert in der kritischen Flanke der Suszeptibilität. Dann wurden aus der Änderung dieses χ' -wertes in Abhängigkeit von der Belastung, über eine Eichmessung $\chi'(T)$ die relativen Verschiebungen der Suszeptibilitätskurven bestimmt.

¹⁾ parallel zur Temperaturachse

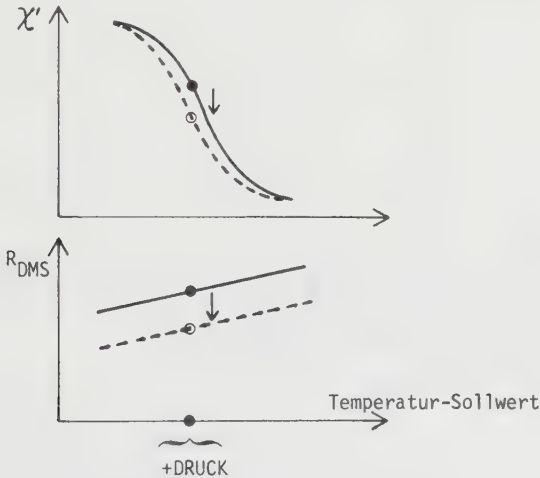
Mit Hilfe von Abb. 4.6 läßt sich das Verfahren etwas deutlicher darstellen:

Übereinander eingezeichnet sind die drei Meßgrößen Suszeptibilität, Widerstand des Dehnungsmeßstreifens und Widerstand des Platinfühlers (als Regeltemperaturfühler), alle drei Größen synchron zur horizontalen Zeitachse. In der linken Hälfte der Abbildung ist zunächst die Reaktion des Systems auf eine Sollwert-Temperaturverstellung von +6 mK wiedergegeben (mit anschließender Rückstellung). Der Doppelpfeil im folgenden Schema deutet die ursprüngliche Verstellung an:



Der Dehnungsmeßstreifen reagiert mit Widerstandserhöhung gemäß seiner Temperaturempfindlichkeit (Kap. 3.2.4.). Die der Suszeptibilität proportionale Spulenspannung erniedrigt sich, bestimmt durch die Ausgangslage des χ' -Wertes auf der abfallenden Flanke oberhalb T_C .

In der rechten Hälfte der Abb. 4.6 bleibt dagegen die Temperatur=
einstellung konstant. Stattdessen wird eine Druckbelastung des
Kristalls durch Anhängen von 1 kg Masse eingestellt (und wieder
rückgestellt).



Die Regeltemperatur reagiert nicht sichtbar darauf, die Probe
bleibt also durchgehend auf gleicher Temperatur. Dagegen ver=
ringert sich der Widerstand des Dehnungsmeßstreifens proportional
zur Verkürzung des Kristalls. Der Suszeptibilitätswert ver=
kleinert sich mit der höheren Druckspannung wegen der relativen
Verschiebung der $\chi'(T)$ -Kurve zu tieferer Temperatur.

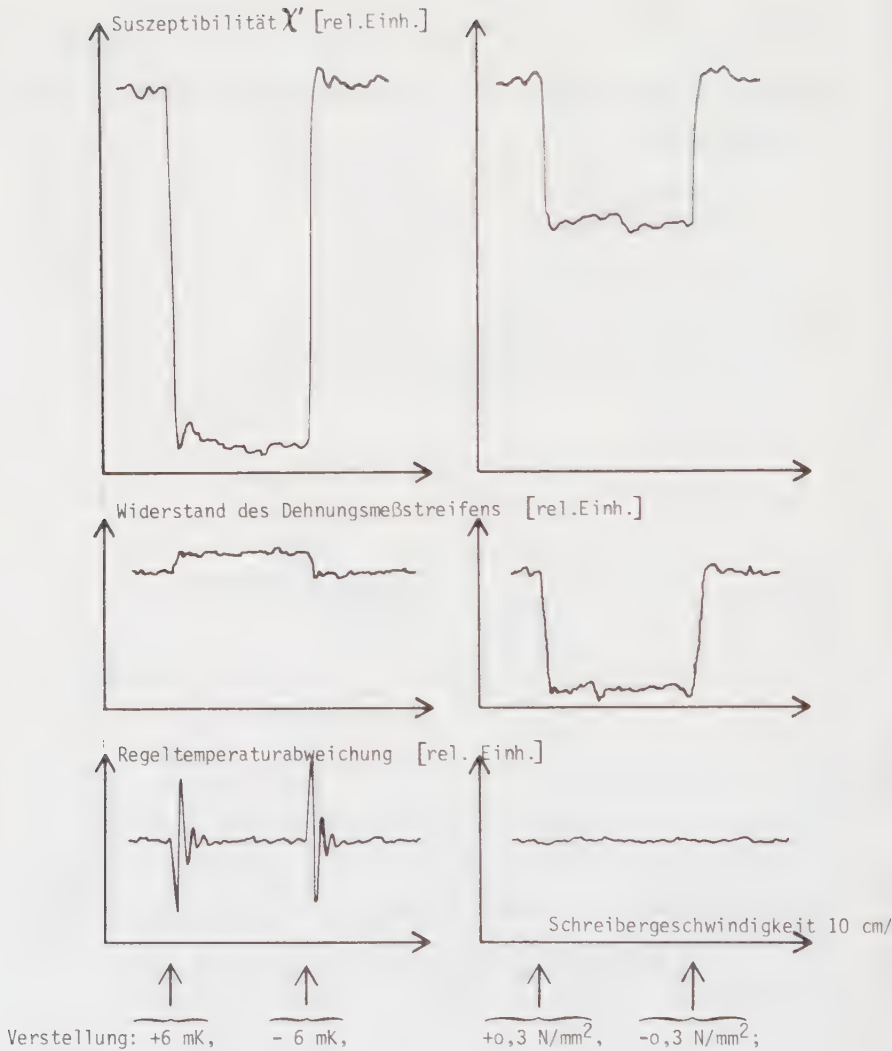


Abb. 4.6: Reproduktion einer Schreiberaufzeichnung zur Suszeptibilitätsmessung.

Zum Abschluß dieses Kapitels soll noch auf eine besondere experimentelle Schwierigkeit hingewiesen werden. Wegen der nur kleinen Werte der T_c -Verschiebungen muß die Temperatur mit der in Kap.3.2.3. angegebenen Genauigkeit von 1 mK geregelt werden können. Die Belastung der Probe erfordert aber eine mechanische Verbindung vom temperaturisolierten Innenraum nach außen, und bringt damit erhebliche thermische Störungen in den Regelkreis. Darüberhinaus erwies sich, daß mit dem Wechsel von Nulllast zu Zug- oder Druckbelastung eine geringfügige geometrische Veränderung im Probenraum stattfindet. Lageveränderungen von nur 1/100 mm irgendeines Teiles von Probe, Fassungen, Temperaturfühler oder Induktionsspule wirken sich natürlich bei dem gegebenen Temperaturgefälle von 300 K über 10 cm Distanz vom Kristall bis zur Außenfläche des Rezipienten, schon deutlich meßbar aus. So blieb nach mehreren neuentwickelten Probenhalterungen zuletzt noch eine den eigentlichen Meßeffect überlagernde Temperaturverschiebung bis zu ± 25 mK beobachtbar, die allein auf geometrischen Ursachen beruhte.

Demzufolge verbesserte sich aber die experimentelle Situation erheblich, wenn anstelle von Nulllast von einer bestimmten Mindestbelastung ausgegangen wurde, und diese dann in Schritten erhöht (bzw. erniedrigt) wurde. Innerhalb des Intervalls zwischen Minimum und Maximum der Belastung (Zahlenwerte siehe Kap. 4.4) waren dann die Temperaturverschiebungen wesentlich genauer und reproduzierbarer zu messen, als bei einem Übergang zu Nulllast.

4.4. Ergebnisse der Suszeptibilitätsmessungen

Bisherige punktuelle Ergebnisse /30,37/ zur Curiepunktsverschiebung unter einachsiger Spannung σ ergaben relativ hohe Werte für $\Delta T_C(\sigma)$ in der Größenordnung von 0,1 K. Diese Resultate waren aber stets nach einem Wechsel zwischen Null- und Maximalbelastung gewonnen worden und sind deswegen mit großer Wahrscheinlichkeit mit den in Kap. 4.3 geschilderten Unsicherheiten behaftet. Die hier beschriebene systematische Meßreihe liefert erstmals den Nachweis eines fast um eine Größenordnung kleineren Effektes, sowie eine Erklärung der Diskrepanz zu den früheren Werten /30,37/.

Abb. 4.7 zeigt zunächst die im Intervall $0,13 \text{ N/mm}^2 \leq \sigma \leq 0,63 \text{ N/mm}^2$ ermittelten T_C -Verschiebungen, die mit einer Genauigkeit von $\pm 1,6 \text{ mK}$ je Belastungspunkt bestimmt wurden. Im Gegensatz dazu steht die wesentlich schlechtere Reproduzierbarkeit für einen Übergang von einem Belastungswert aus diesem Intervall zur Nulllast, die im Diagramm mit der Fehlerbreite von $\pm 26 \text{ mK}$ für den Nullwert $\Delta T_C(\sigma = 0)$ gekennzeichnet wurde.

Für die T_C -Abhängigkeit von der Belastung σ ergibt sich bei

Zugspannung: $\Delta T_C(\sigma) = - (8 \pm 3) \text{ mK/N/mm}^2$, und bei

Druckspannung: $\Delta T_C(\sigma) = - (7 \pm 3) \text{ mK/N/mm}^2$.

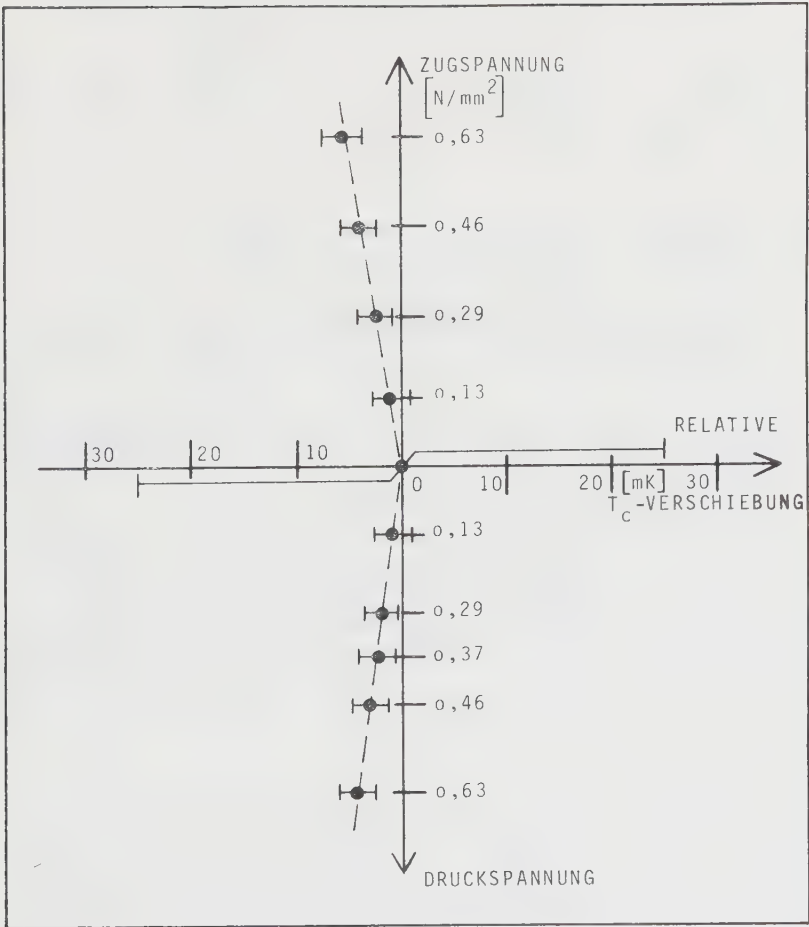


Abb. 4.7: Curiepunktverschiebung bei einachsiger elastischer Spannung am $\langle 100 \rangle$ -orientierten Nickel-Einkristall.

Für die T_C -Verschiebung bei maximaler elastischer Spannung

$\sigma_C = 1,4 \text{ N/mm}^2$ folgt aus linearer Extrapolation bei

Zugspannung: $\Delta T_C(\sigma_C) = - (11 \pm 4) \text{ mK}$, und bei

Druckspannung: $\Delta T_C(\sigma_C) = - (10 \pm 4) \text{ mK}$.

Zusammengefaßt sind die wesentlichen Ergebnisse:

- T_C -Verschiebung zu tieferen Temperaturen bei einachsiger Druck- und Zugspannung parallel zur $\langle 100 \rangle$ -Achse;
- Bis zum niedrigsten eingestellten Belastungswert $\sigma \approx \frac{1}{10} \sigma_C$ keine sichtbare Tendenz in Abb.4.7 zu tangentialem Einmünden der T_C -Linien in die Temperaturachse;
- Stets gleichbleibende Form der $\chi'(T, \sigma)$ -Kurven ("deckungsgleiche" Kurven mit derjenigen der Abb. 4.3), also Unabhängigkeit der Amplitude χ'_0 und des Exponenten γ des Potenzgesetzes vom Parameter σ .

5. NEUTRONENSTREUEXPERIMENTE

Der experimentelle Teil der vorliegenden Arbeit behandelte bislang nur den Aspekt der Curiepunktsverschiebung in Abhängigkeit von einachsiger Belastung des Kristalls, sowie die dafür angewendete Suszeptibilitätsmeßmethode. Mit den Experimenten des folgenden Abschnittes werden weitere und detailliertere Informationen über die Auswirkungen der einachsigen Belastung, so vor allem über die Anisotropie der Spinfluktuationen, gewonnen.

Eine prädestinierte Untersuchungsmethode ist hier die Neutronenstreuung, weil durch sie unmittelbar die Reichweite von Korrelationen sichtbar wird (siehe Kap. 2.3). Entsprechend der Ausdehnung der Spinfluktuationen sind thermische Neutronen mit möglichst großer Wellenlänge geeignet für die Messungen. Einen Überblick über die Relationen zwischen kinetischer Energie und weiteren Größen der thermischen Neutronen gibt das Schema in Abb. 5.1.

Vorteilhafterweise werden die Neutronenstreuemessungen mit einem zweidimensionalen Multidetektor durchgeführt, sodaß Streuintensitäten in verschiedenen Richtungen simultan ausgewertet werden können. Diese Möglichkeit bietet die Kleinwinkelstreuapparaturs D11 des Instituts Laue-Langevin (ILL) in Grenoble. Der Aufbau des Instrumentes ist in Abb. 5.2 skizziert (ausführliche Beschreibung z.B. in /38/). Analog zum vorigen 4. Abschnitt werden dann im weiteren wieder das experimentelle Verfahren, die Auswertung und die Ergebnisse der Messungen mit dieser Streuapparaturs beschrieben.

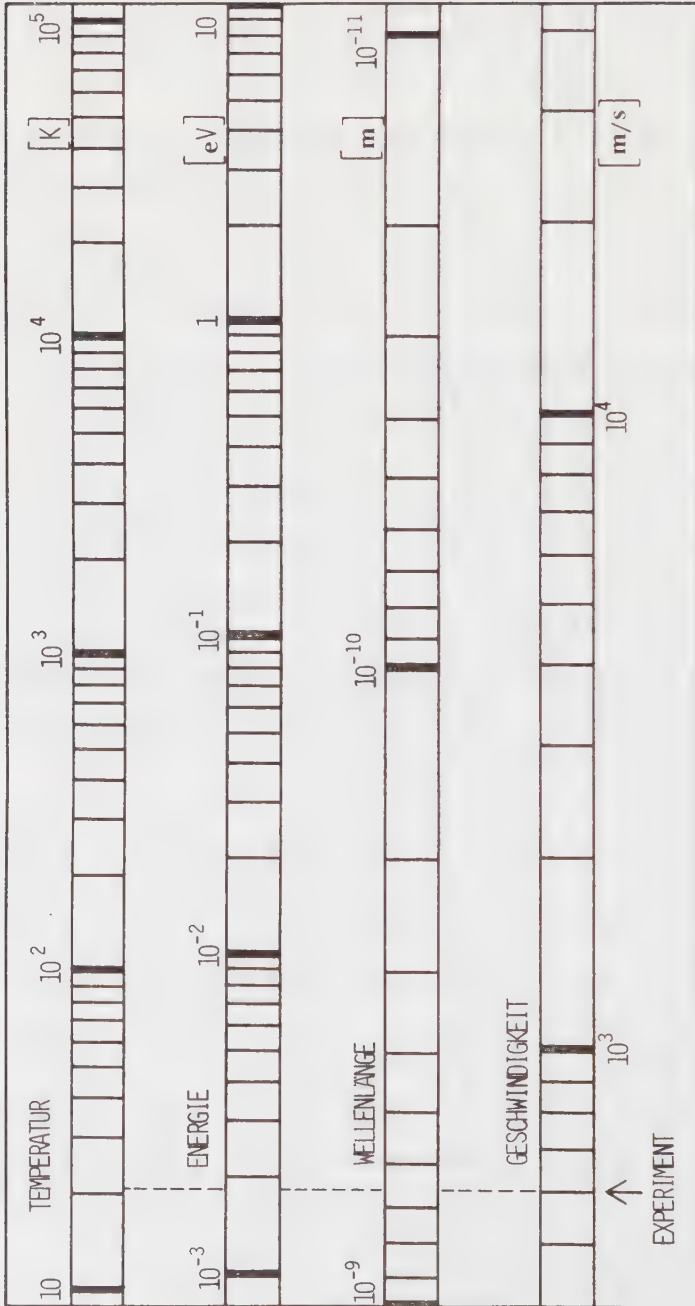


Abb. 5.1: Zuordnung verschiedener Größen für Neutronen.

5.1. Kleinwinkelstreuinstrument D11

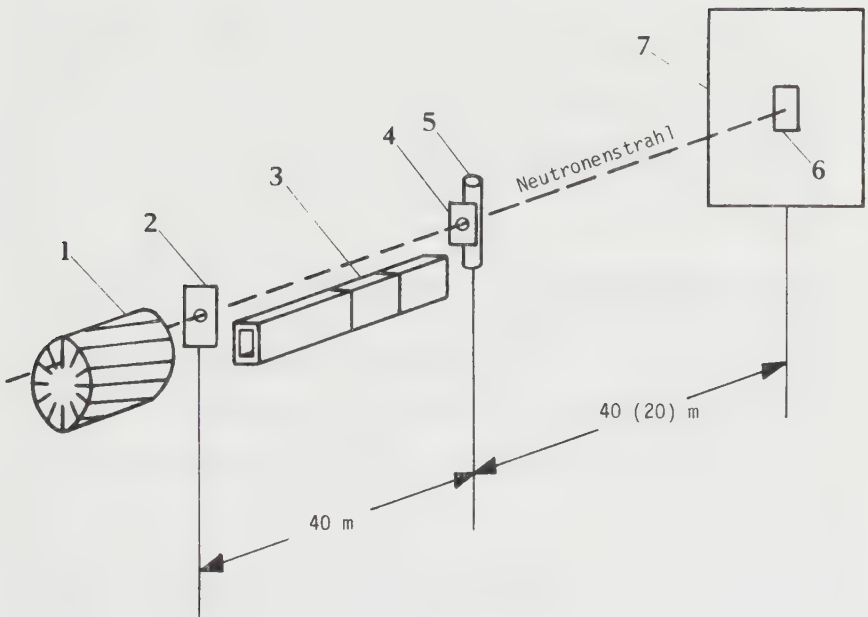


Abb. 5.2: Schematischer Aufbau der Neutronenkleinwinkelstreuapparatur D11

- 1 : Monochromator (mechanischer Geschwindigkeitsselektor),
- 2 : Kollimatorblende mit 20 mm $\varnothing$,
- 3 : Neutronenleiter, in der aus dem Strahl herausgenommenen Position;
dadurch größtmögliche Kollimation der einfallenden Neutronen,
- 4 : Probenblende, letzte Blende vor der Probe mit 4,5 mm $\varnothing$,
- 5 : Probe,
- 6 : Primärstrahlabdeckung mit 5 x 7 cm² Fläche,
- 7 : Detektor, Matrix aus 64 x 64 Einzelzellen von 1 cm² Größe,
Gesamte Neutronenstrecke im Vakuum.

Weitere Parameter:

- mittlere Wellenlänge der einfallenden Neutronen $\lambda = 0,67$ nm,
- relative Halbwertsbreite der λ -Verteilung $\Delta\lambda/\lambda = 9\%$,
- maximaler Neutronenfluß bei dieser Wellenlänge $n = 10^6$ s⁻¹cm⁻²,
- Impulsübertrag und Streuwinkel siehe Tabelle 5.1, Seite 59,
- Winkelauflösung $\Delta\varphi/\varphi = 1/32$ des maximalen Streuwinkels.

5.2. Streugeometrie

Um Korrelationslängen von etwa 500 nm (entsprechend $\tau \approx 10^{-5}$) in kritischer Neutronenstreuung beobachten zu können, müssen Streuvektoren bis zu Werten $q = 2\pi/500 \text{ nm}^{-1} = 1,3 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$ gemessen werden. Die ungewöhnlichen Abmessungen der Neutronenstreu kamera D11 sind erforderlich, um dieses Ziel äußerst kleiner Streuvektoren über die entsprechenden kleinen Ablenkwinkel zu realisieren. Außerdem muß eine möglichst große Neutronenwellenlänge verwendet werden. Die Neutronenwellenlängen am D11 reichen bis über 1,2 nm hinaus. Wegen der stark abfallenden Intensität zu den höheren Werten hin, wurde hier jedoch als Kompromiß eine Wellenlänge in der Nähe des gegebenen Maximums bei etwa 0,5 nm gewählt.

Bei kleineren Wellenlängen muß aber die Möglichkeit der Bragg-Reflexion beachtet werden. Zweifache Bragg-Reflexion /39/ führt zu unerwünschter Maskierung der kritischen Kleinwinkelstreuung. Daher muß die Wellenlänge der einfallenden Neutronen $\lambda > 2d_{\text{max}}$ sein, wobei d_{max} den größten Gitterebenenabstand in der Probe bedeutet. Im Falle des fcc-Gitters von Nickel mit der Gitterkonstanten $a = 0,35 \text{ nm}$ folgt für

$$2d_{\text{max}} = 2 \cdot a \frac{\sqrt{3}}{3} = 0,40 \text{ nm} .$$

Mit $\lambda = 0,67 \text{ nm}$ ist somit ein ausreichender Abstand zur Braggkante gegeben.

Nach der Festlegung der Neutronenwellenlänge ist der kleinste mögliche Streuvektor bestimmt durch den Öffnungswinkel der

Primärstrahlabdeckung, vom Ort der Probe aus gesehen. Im günstigsten Fall folgt aus einem minimalen Durchmesser dieser Abdeckung von 4 cm bei einem Abstand Probe - Detektor von 40 m der kleinste Streuwinkel $\theta = 0,029^\circ$. Dies im Bogenmaß multipliziert mit $2\pi/\lambda$ ergibt den kleinsten Streuvektor $q_{\min} = 0,5 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$. In Tab. 5.1 sind die inneren und äußeren Grenzwerte der Streuvektoren für drei verschiedene Detektorpositionen aufgeführt.

Tab. 5.1: Streuvektoren $q = (4\pi/\lambda) \sin \theta/2$ mit $\lambda = 0,67 \text{ nm}$

Abstand Probe-Detektor	Radialer Abstand vom Zentrum auf dem Multidetektor		
	Min 2 cm	4 cm	Max 32 cm
10 m	$2 \cdot 10^{-2}$	$3,7 \cdot 10^{-2}$	$30 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$
20 m	$1 \cdot 10^{-2}$	$1,9 \cdot 10^{-2}$	$15 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$
40 m	$0,5 \cdot 10^{-2}$	$0,9 \cdot 10^{-2}$	$7,5 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$
Winkel:	$0,03^\circ$	$0,06^\circ$	$0,46^\circ$

Der Gesamtfehler der q -Messung berechnet sich unter Einbeziehung aller geometrischen Faktoren und der Wellenlängenauflösung nach /40/ zu

$$\langle \Delta q^2 \rangle = \frac{k^2}{12} \left[\left(\frac{d}{l} \right)^2 + \left(\frac{D}{L} \right)^2 + p^2 \left(\frac{1}{l} + \frac{1}{L} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \lambda}{\lambda} \right)^2 \theta^2 \right],$$

mit

$k = 2\pi/0,67 \text{ nm}^{-1}$, Wellenvektor der einfallenden Neutronen,
 $d = 2 \text{ cm}$, Durchmesser der Kollimatorblende,
 $l = 40 \text{ m}$, Abstand Kollimatorblende - Probe,

$D = 1 \text{ cm}$, Durchmesser eines Detektorelementes,
 $L = 40 \text{ m}$, Abstand Probe - Detektor,
 $p = 0,5 \text{ cm}$, Durchmesser der Probenblende,
 Streuwinkel $\theta_{\min} = 5 \cdot 10^{-4}$ bis $\theta_{\max} = 8 \cdot 10^{-3}$.

Mit diesen Werten ergibt sich

$$\langle \Delta q^2 \rangle = \frac{87}{12} \left[25 \cdot 10^{-8} + 6 \cdot 10^{-8} + 6 \cdot 10^{-8} + \begin{cases} 52 \cdot 10^{-8} & \text{für } \theta_{\max} \\ 8 \cdot 10^{-9} & \text{für } \theta_{\min} \end{cases} \right]$$

Die optimale geometrische Konfiguration ist diejenige, bei der die einzelnen Beiträge von gleicher Größe sind. Aus den Zahlen ist zu entnehmen, daß die große Kollimatorblende (zugunsten hoher Intensität) den überwiegenden Beitrag zur Streuunschärfe liefert, während die Wellenlängenunschärfe in den inneren Zonen des Detektors vernachlässigbar klein, in den äußeren hingegen der dominante Anteil ist.

Insgesamt ist somit festzustellen, daß der von der experimentellen Geometrie bestimmte kleinste Streuvektor $q_{\min} = 0,5 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$ mit einer Genauigkeit von $\Delta q/q = 32\%$ (der nächstkleinere mit 17%) erfaßt werden kann. Dem Grenzwert $q_{\min}$ entsprechen formal gesehen Korrelationslängen von 1300 nm. Diese wiederum bedeuten für Nickel eine Annäherung an T_c von $\tau \approx 1 \cdot 10^{-6}$.

5.3. Optimale Dicke der Probe

Nach /40/ gilt für den Anteil dN der in ein Raumwinkelement $d\Omega$ gestreuten Neutronen bei kleinen Streuwinkeln

$$\frac{dN}{d\Omega} = N_0 e^{-\Sigma_{\text{tot}} \cdot D} \cdot D \frac{d\Sigma(\vec{q})}{d\Omega} ,$$

mit

- N_0 : Anzahl der Neutronen im Primärstrahl,
- Σ_{tot} : Totaler makroskopischer Wirkungsquerschnitt,
- D : Dicke der Probe,
- $d\Sigma(\vec{q})/d\Omega$: Differentieller makroskopischer Wirkungsquerschnitt,
- $\vec{q}$: Streuvektor .

Für zunehmenden Wert D beschreibt der Faktor $e^{-\Sigma_{\text{tot}} \cdot D}$ die abnehmende Zahl des Neutronendurchsatzes aufgrund der anwachsenden Absorption, und der Faktor D die insgesamt ansteigende Streuwahrscheinlichkeit. Das Maximum der Funktion ist gegeben durch

$$\frac{\partial(dN/d\Omega)}{\partial D} \Rightarrow e^{-\Sigma_{\text{tot}} \cdot D} \cdot (-\Sigma_{\text{tot}}) \cdot D + e^{-\Sigma_{\text{tot}} \cdot D} = 0 .$$

Daraus folgt

$$\Sigma_{\text{tot}} \cdot D_{\text{max}} = 1 .$$

Weiterhin ist

$$\Sigma_{\text{tot}} = Z \cdot \sigma_{\text{tot}} ,$$

mit

- Z : Teilchendichte für Nickel = $0,9 \cdot 10^{23} \text{ cm}^{-3}$,
- σ_{tot} : Totaler atomarer Wirkungsquerschnitt (für Nickel und Neutronen der Wellenlänge $0,67 \text{ nm}$) = $23 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 / 41$.

Die optimale Dicke für Nickel ergibt sich damit zu $D_{\text{max}} = 4,8 \text{ mm}$.

5.4. Meßablauf

Ein üblicher Meßzyklus dauerte 3 Tage und bestand aus drei Durchgängen durch das kritische Gebiet, jeweils von einer Starttemperatur oberhalb T_c ausgehend gegen T_c : Der erste Durchgang ohne Belastung des Kristalls, der zweite mit Zug- oder Druckspannung, der dritte als Kontrollmessung wieder ohne Last. In einem Durchgang konnten ungefähr 20 Temperaturwerte eingestellt werden. Die Neutronenzählung bei einer bestimmten Temperatur dauerte 20 bis 30 Minuten, die Wartezeit danach bis zum nächsten Temperaturgleichgewicht etwa 30 Minuten.

Um eine anschauliche Darstellung eines Meßdurchganges zu geben, sind in Abb. 5.3 auf der linken Seite einer Temperaturachse quasi-dreidimensionale Streuintensitätsgebirge über der Multidetektorfläche für drei Temperaturwerte skizziert. Die jeweils zugehörigen Ornstein-Zernike Diagramme sind auf der rechten Seite angedeutet.

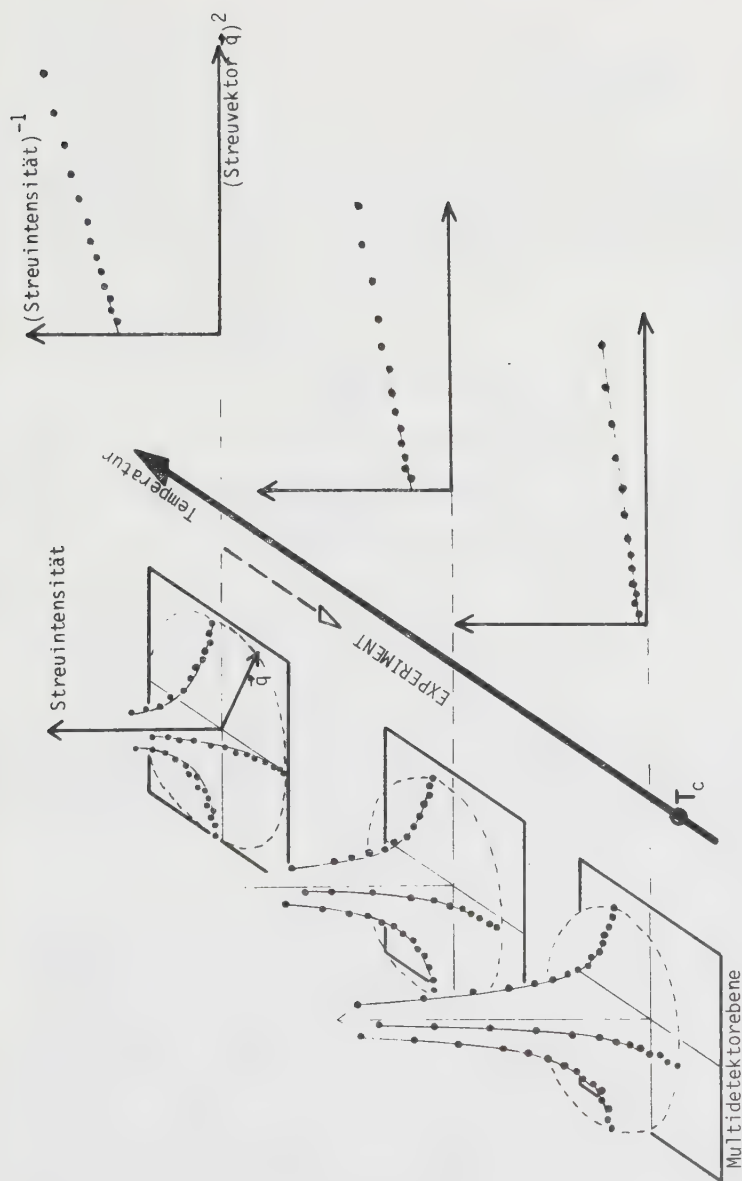


Abb. 5.3: Schema eines Meßganges kritischer Neutronenstreuung mit den entsprechenden Ornstein-Zernike Diagrammen. Diese können sich auf eine bestimmte Richtung in der Multidetektorebene beziehen, oder bei isotroper Auswertung aus der im Kreisbogen durchgeführten Mittelung entstanden sein.

5.5. Auswertung

5.5.1. Inelastizität

In Kap. 2.3 war $\vec{q}$ als Streuvektor bei elastischer Streuung definiert worden. Ein Kleinwinkelstreuexperiment in der hier beschriebenen Version ist aber keine "constant - $\vec{q}$ "-Messung, sondern ein Messen von Intensitäten unter konstantem Streuwinkel.



Wie im Bild angedeutet, werden verschiedene Differenzvektoren durch eine Detektorzelle erfaßt, die elastische und die inelastischen Streuintensitäten für diesen bestimmten Streuwinkel also zu einem Wert aufintegriert. Für die Energieabgabe vom Neutron an die Probe ist dabei prinzipiell eine obere Grenze durch den Gesamtbetrag der Energie des einfallenden Neutrons gegeben. Dagegen ist die Energieaufnahme für das Neutron nur insoweit begrenzt, wie entsprechende Anregungszustände und Wechselwirkungsmöglichkeiten der Probe bestehen.

Ein Ensemble von Teilchen, das sich in völliger Ruhe an starren Positionen befindet, ergäbe rein elastische Neutronenstreuung, in entsprechender Weise würden statische Fluktuationen nur elastische kritische Streuung bewirken. Fluktuationen sind aber per definitionem dynamisch wechselnde Spinzustände, mit Lebensdauern im Bereich von Picosekunden, und mit exponentiell zunehmender Relaxationszeit bei Annähern an T_c (siehe Abb. 2.1). In den früheren Jahren wurde deshalb kritische Streuung von vornherein nur als inelastischer Wechselwirkungsprozeß betrachtet /25/.

Erst mit fortschreitender instrumenteller Technik und mit kleinerer Winkelauflösung ließ sich die Möglichkeit einer quasielastischen Näherung verwirklichen. Dann nämlich wird bei sehr kleinen Streuvektoren das Verhältnis von Energieübertrag beim Streuprozess zu Energie des einfallenden Neutrons ausreichend klein. Ein Kriterium dafür lautet nach /40/:

$$D q^2 \ll E ,$$

mit

- D : Spin-Diffusionskonstante,
nach /43/ ist für Nickel $D(T_C) \approx 100 \text{ meV} \cdot \text{\AA}^2$,
- $\vec{q}$: Streuvektor, $q = 1 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$,
- E : Energie der einfallenden Neutronen,
nach Abb. 5.1 ist $E \approx 2 \cdot 10^{-3} \text{ eV}$.

Mit diesen Werten folgt für eine Abschätzung

$$D q^2 \approx 10^{-7} \text{ eV} \ll E \approx 10^{-3} \text{ eV} .$$

Das ergibt offensichtlich die Berechtigung, die Experimente in der vorliegenden Konfiguration als quasielastisch zu betrachten.

Trotzdem soll noch darauf hingewiesen werden, daß sich bei einer anderen Betrachtungsweise dieser Aspekt nicht so eindeutig darstellt. Van Hove /44/ argumentierte bereits, daß der Energieaustausch von Neutronen und kritischen Fluktuationen dann vernachlässigbar klein sei, wenn die Aufenthaltszeit des Neutrons in der Fluktuation kurz ist gegen die Relaxationszeit derselben. Diese Bedingung ist natürlich genügend nahe an T_C immer erfüllt, aber offenbar nicht unbedingt im hier erfaßten kritischen Bereich:

Der reduzierten Temperatur $\tau=10^{-4}$ zum Beispiel entspricht die Korrelationslänge $\xi \approx 50$ nm (Abb. 2.1). Mit der Geschwindigkeit der Neutronen $v = 6 \cdot 10^2$ m/s (Abb. 5.1) wäre dann die Aufenthaltszeit eines Neutrons in einer Fluktuation $t \approx 8 \cdot 10^{-11}$ s. Dem steht eine Relaxationszeit nach einer Mößbauer-Messung (/11/ an Ni^{57}Fe für $\tau < 10^{-2}$) von $t \approx 6 \cdot 10^{-12}$ s gegenüber, die demnach wesentlich kürzer wäre. Wenn man stattdessen die Meßdaten aus einem Neutronenstreuexperiment (/45/ an Nickel für $\tau > 10^{-2}$) zum Vergleich heranzieht, ergibt sich dann allerdings eine längere Relaxationszeit $t \approx 10^{-9}$ s. Nur ist dieser Wert von $\tau = 10^{-2}$ nach $\tau = 10^{-4}$ extrapoliert, und möglicherweise auch ein insgesamt umstrittenes Resultat /46,11/.

Zu diesem Aspekt kann schließlich noch das Ergebnis einer Arbeit von Als-Nielsen /47/ angeführt werden. Darin wird gezeigt, daß sich experimentelle Streudaten nach einer Korrektur bezüglich inelastischem Anteil zwar besser durch die Ornstein-Zernike-Näherung beschreiben lassen, daß sich aber im Endeffekt der Wert des ermittelten kritischen Exponenten γ nicht ändert.

5.5.2. Statistischer Fehler und Korrekturen

Der statistische Fehler eines Intensitätswertes I in einer einzelnen Detektorzelle ist $\sqrt{I}$. Bei einer Messung mit 40 m Detektorabstand reichen die Intensitätswerte von minimal 1 Impuls/20 min-Zelle in den äußeren Randzellen bis zu etwa 500 Impulsen/20 min-Zelle in den inneren Zellen, an der Primärstrahlabdeckung. Demgemäß ändert sich der statistische Fehler von 100% außen bis zu 5% im günstigsten Fall innen.

Dieser relativ große Fehler kann wesentlich reduziert werden, wenn bei isotroper Analyse der Multidetektordaten alle n Zellen mit konstantem Abstand vom Zentrum zu der Gesamtintensität I_{Ges} aufsummiert werden. Gemäß

$$\Delta I = \frac{\sqrt{I_{\text{Ges}}}}{n} = \frac{1}{\sqrt{n}} \sqrt{\frac{I_{\text{Ges}}}{n}} = \frac{1}{\sqrt{n}} \sqrt{I}$$

verringert sich dann der Fehler pro Zelle mit $1/\sqrt{n}$. So wird zum Beispiel im innersten Ring $\Delta I/I = \frac{1}{5} \cdot 5\%$. Die Fehler, die bei der Bestimmung von Exponenten eines isotropen Systems einfließen, bekommen auf diese Weise noch annehmbar kleine Werte. Bei einer anisotropen Analyse jedoch müssen die betreffenden Intensitäten in den untersuchten Richtungen einzeln herangezogen werden. Mit den hier gegebenen Streuintensitäten nehmen dann die Fehler sehr große Werte oberhalb von 5% an.

Da das wesentliche Ziel dieser Arbeit eine richtungsabhängige Analyse war, mußten diese Fehler in Kauf genommen werden. Deswegen aber verlieren die weiteren systematischen Korrekturen an Bedeutung, bzw. sind schwerer in ihrer Wirksamkeit zu beurteilen. Diesem Nachteil steht allerdings auch gegenüber, daß sich die Anisotropieeinflüsse aus dem Vergleich von Streufiguren unter sonst gleichen Bedingungen ergeben. Dabei können in erster Näherung die konstanten Störbeiträge vernachlässigt werden.

Die Streudaten wurden mit teilweise etwas modifizierten Computerprogrammen aus dem Softwareangebot des ILL im Hinblick auf folgende Korrekturen untersucht:

- a) Ausgleichsmittelung der Rohdaten,
- b) Entfaltung mit angenähertem (Rechteck-) Spaltprofil,
- c) Untergrundkorrektur.

Zu a): Die Mittelung aller Intensitätswerte der Multidetektor=ebene bezüglich der jeweils umliegenden Werte ist optisch sehr wirkungsvoll. In der gegebenen Situation ist aber die Wirkung eher ungünstig, weil die wenigen inneren Zellen mit der hohen Intensität die ausschlaggebenden sind, und zu empfindlich gegen kleinste Änderungen. Diese Maßnahme ist daher nur zum Vergleich studiert worden.

Zu b): Die Entfaltungsprozedur wirkt sich nur vernachlässigbar wenig aus, mit Änderungen unterhalb 1% der Absolutwerte der Streuintensitäten.

Zu c): Die Untergrundkorrektur muß im Prinzip bei Neutronenstreuung sehr sorgfältig behandelt werden. In Abb. 5.5 ist hierzu der Intensitätsverlauf bei der höchsten gemessenen Temperatur von 35 K oberhalb T_C ($\tau = 5,5 \cdot 10^{-2}$) wiedergegeben. Dort ist der kritische Anteil mit Sicherheit vernachlässigbar klein.

Angesichts der zuvor diskutierten Fehler war es ausreichend, die Intensitäten bei dieser Temperatur als Untergrund für alle näher an T_C gelegenen anzusehen, und konstant von allen diesen abzuziehen.

5.6. Ergebnisse der Neutronenstreuung

Die in Kap. 3.1 beschriebenen Proben waren unter dem Gesichtspunkt gewählt, zum einen die Messungen in /30/ (dort Zug in $\langle 111 \rangle$ -Richtung) durch Druck in $\langle 111 \rangle$ -Richtung zu ergänzen, und darüberhinaus an einem $\langle 100 \rangle$ -orientierten Kristall Druck und Zug zu untersuchen. Von dieser Zielsetzung blieb die Messung mit Druck in $\langle 100 \rangle$ -Richtung ohne Resultat, weil der entsprechende Meßgang am D11 nicht genügend nahe an T_c herankam.

Bei den zuerst durchgeführten Experimenten am $\langle 111 \rangle$ -orientierten Kristall wurde eine Probenhalterung verwendet, in der der Einkristall noch nicht gegen Verdrehungen um seine Längsachse gesichert war. Die Richtung des Neutronendurchganges im Kristall ist daher für diese Messung nicht zuverlässig angebbar. Bei den anschließenden Experimenten mit dem $\langle 100 \rangle$ -orientierten Kristall in einer nunmehr fixierten Halterung, lag die Durchtrittsrichtung des Neutronenwellenvektors $\vec{k}$ mit einer Genauigkeit von ± 2 Grad parallel zu einer $\langle 110 \rangle$ -Kristallachse. Die (110)-Ebene wurde als Streuebene gewählt, um damit eine Ebene maximaler Kristallanisotropie in der Multidetektorfläche abzubilden (siehe Abb. 6.3d, Seite 89).

Die nachfolgenden Abbildungen zeigen wichtige Phasen des Meßganges und der Auswertung. Zunächst ist in Abb. 5.4 ein Intensitätsverlauf von der Temperatur abhängig dargestellt, dann in Abb. 5.5 ein Intensitätsverlauf vom Streuvektor abhängig.

Abb. 5.6 zeigt das Ergebnis einer Messung ohne Spannungsbelastung. Alle Kontrollmessungen ohne Spannung, von denen jeweils eine vor und nach jedem Meßgang mit Spannung durchgeführt wurde, ergeben innerhalb der angeführten Fehlergrenzen gleiche Ergebnisse wie in Abb. 5.6.

Abb. 5.7 stellt als Beispiel ein Diagramm für die Suszeptibilität χ und den Exponenten γ bei Zugbelastung in $\langle 100 \rangle$ -Richtung, Abb. 5.8 hingegen für die Korrelationslänge ξ und den Exponenten ν bei Druckbelastung in $\langle 111 \rangle$ -Richtung dar.

Mit der letzten Abb. 5.9 wird zur Vervollständigung das Endergebnis der vorangegangenen Arbeit /30/ reproduziert. In diesem Bild ist κ , der Kehrwert der Korrelationslänge ξ , aus einer Messung mit Zugbelastung an einem anderen, als dem hier verwendeten, $\langle 111 \rangle$ -orientierten Kristall wiedergegeben.

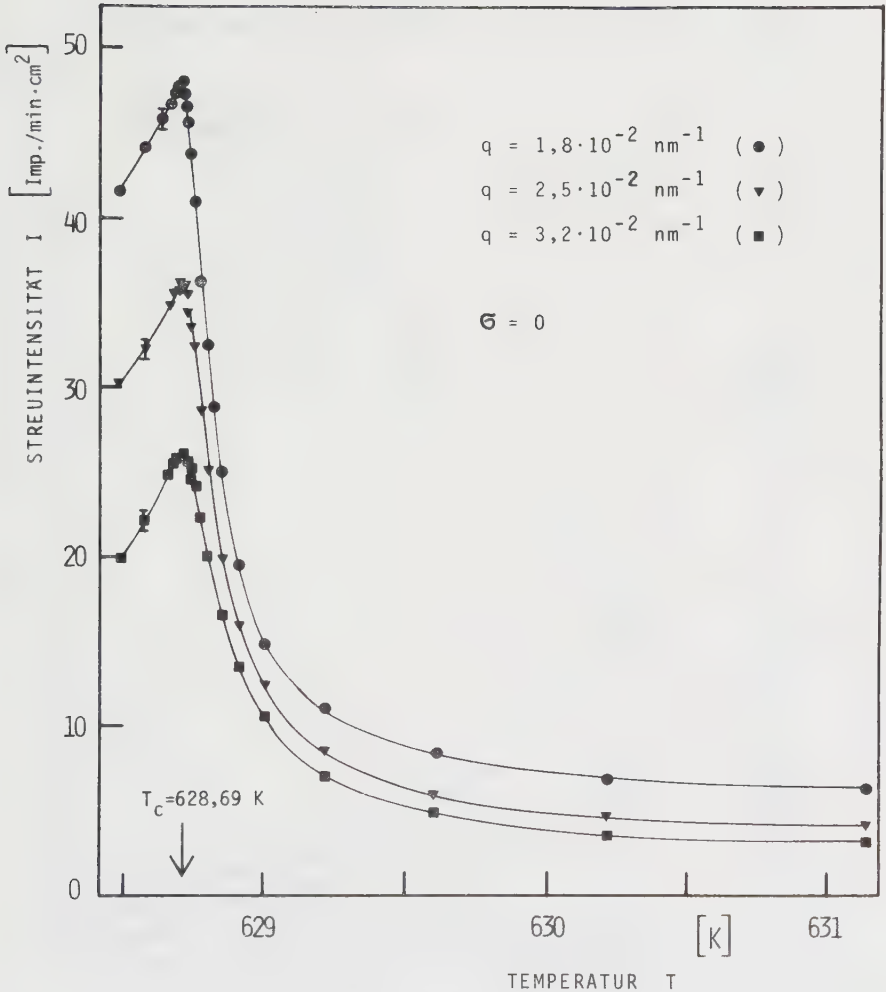


Abb. 5.4: Temperaturgang der Streuintensitäten für den $\langle 100 \rangle$ -orientierten Kristall ohne mechanische Spannungsbelastung. (Die höheren Temperaturpunkte bis 35 K oberhalb T_C sind nicht aufgetragen.) Eingezeichnete Linien zur Orientierungshilfe. Gemittelte Intensitätswerte zum jeweils angegebenen Streuvektorbetrag entsprechend einer isotropen Auswertung. Bei dieser Darstellungsweise verlaufen die Meßkurven mit Druck- und Zugspannung wegen der Mittelung über alle Richtungen optisch nicht unterscheidbar zu den hier wiedergegebenen. Die angegebene Curietemperatur T_C folgt aus der der Abb.5.6 zugrundeliegenden Fitprozedur.

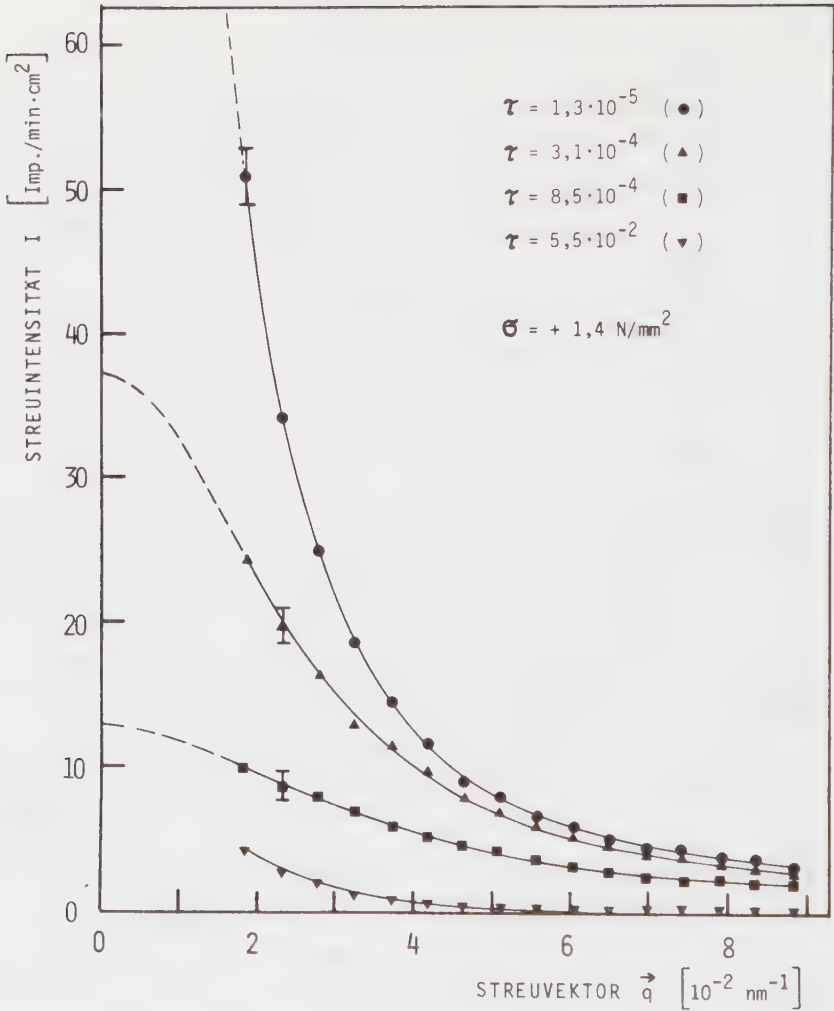


Abb. 5.5: Beispiel für Streuintensitäten in Abhängigkeit vom Streuvektor für den $\langle 100 \rangle$ -orientierten Kristall mit einachsiger Zugspannung $\sigma_c = 1,4 \text{ N/mm}^2$. Dargestellt sind die Intensitätswerte in der auf die Detektorebene projizierten magnetisch leichten Richtung. Eingezeichnete Linien als Orientierungshilfe. Die Ordinatenschnittpunkte entsprechen dem Ergebnis der Auswertung.

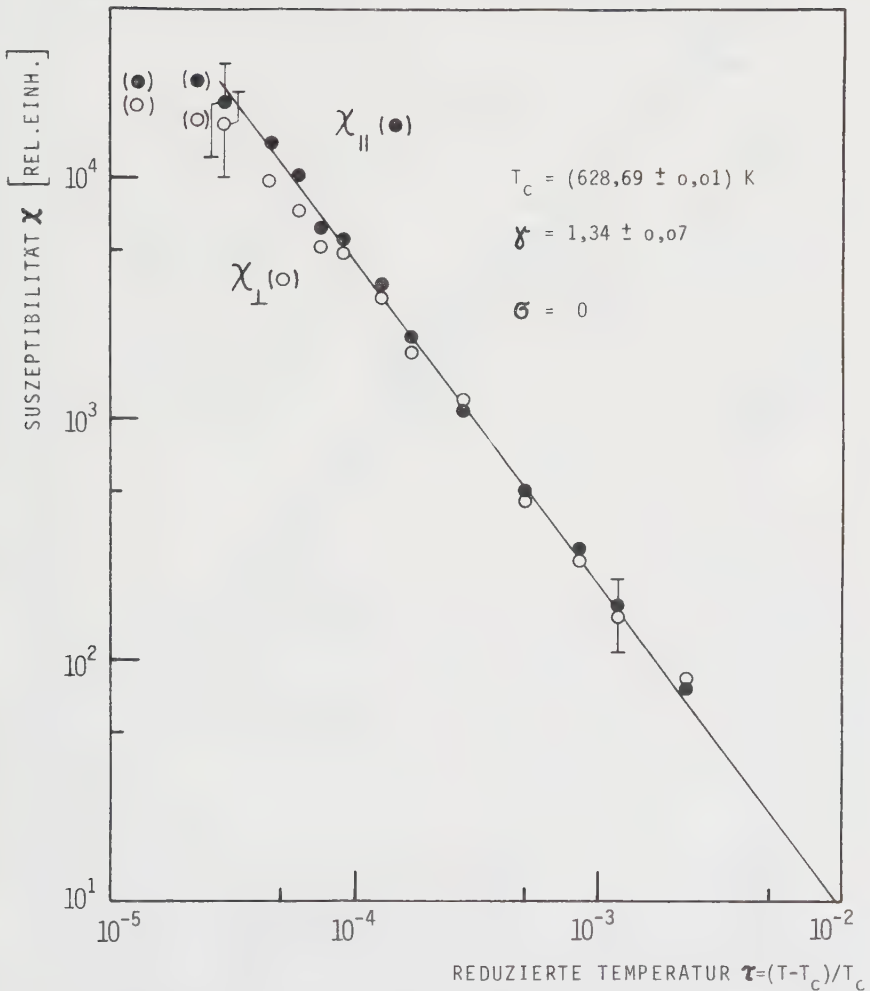


Abb. 5.6: Suszeptibilität χ in Abhängigkeit von der reduzierten Temperatur oberhalb T_c für den $\langle 100 \rangle$ -orientierten Kristall ohne Spannungsbelastung. Kontrollmessung nach dem Durchgang mit Zugspannung. Eingezeichnete Fitgerade und die aus der Fitprozedur folgenden Werte für kritische Temperatur T_c und Exponent γ . Dabei verwendeter Streuvektorbereich $1,9 \cdot 10^{-2} \leq q \leq 9 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$. Auswertung in denselben Richtungen wie in der folgenden Abb. 5.7. Der Temperaturmeßfehler liegt hier und in den folgenden Log-Log-Diagrammen innerhalb der gezeichneten Punktbreite. Die 4 eingeklammerten Punkte wurden nicht für den Fit verwendet.

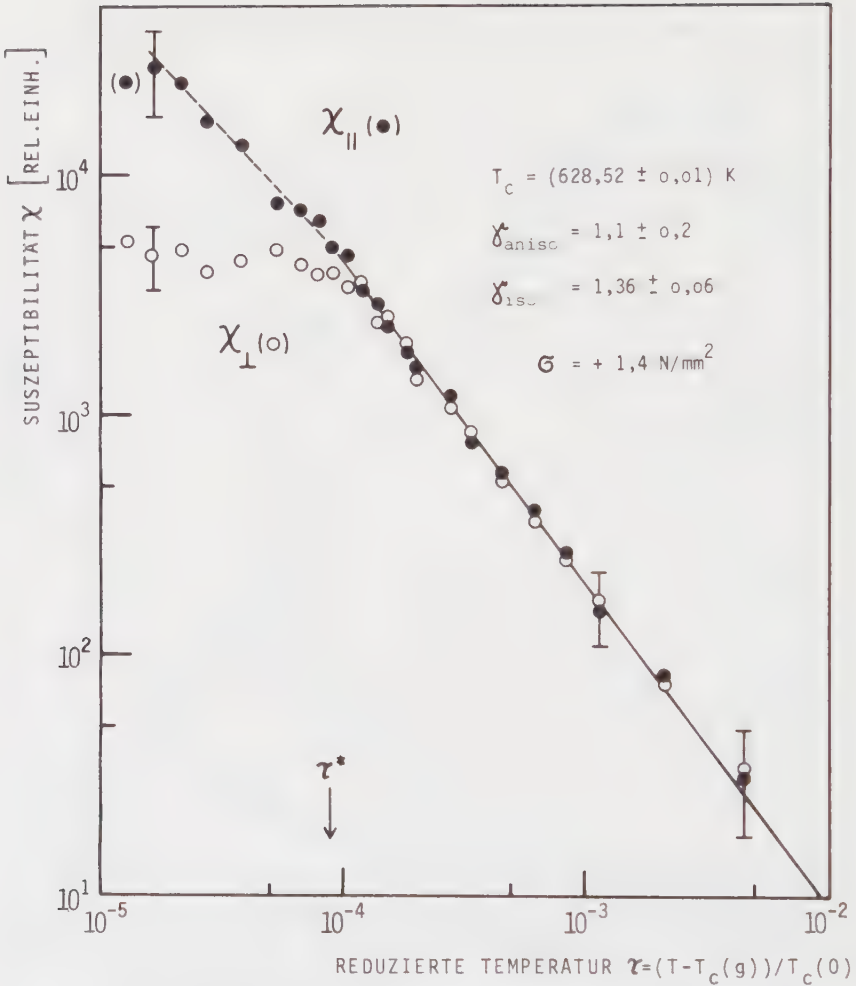


Abb. 5.7: Suszeptibilität in Abhängigkeit von der reduzierten Temperatur oberhalb T_c für den $\langle 100 \rangle$ -orientierten Kristall mit einachsiger Zugspannung $\sigma_c = 1,4 \text{ N/mm}^2$. Aus der Fitprozedur unter Einbeziehung aller Meßpunkte oberhalb τ^* ergeben sich die gezeichnete Fitgerade (—), sowie die Werte für T_c und χ_{iso}^* . Entsprechend ergeben die ausgefüllt gezeichneten Meßpunkte ($\bullet$) unterhalb τ^* eine Fitgerade (---), und χ_{anisc}^* . Aus dem Schnittpunkt der beiden Geraden folgt eine Crossover-Temperatur $\tau^* = (9 \pm 3) \cdot 10^{-5}$.

Genutzter Streuvektorbereich $1,9 \cdot 10^{-2} \leq \vec{q} \leq 9 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$. Auswertung in den beiden Richtungen $\parallel$ und $\perp$ zu der durch die Zugspannung bewirkten magnetisch leichten Richtung.

Der eingeklammerte Punkt wurde nicht für den Fit verwendet.

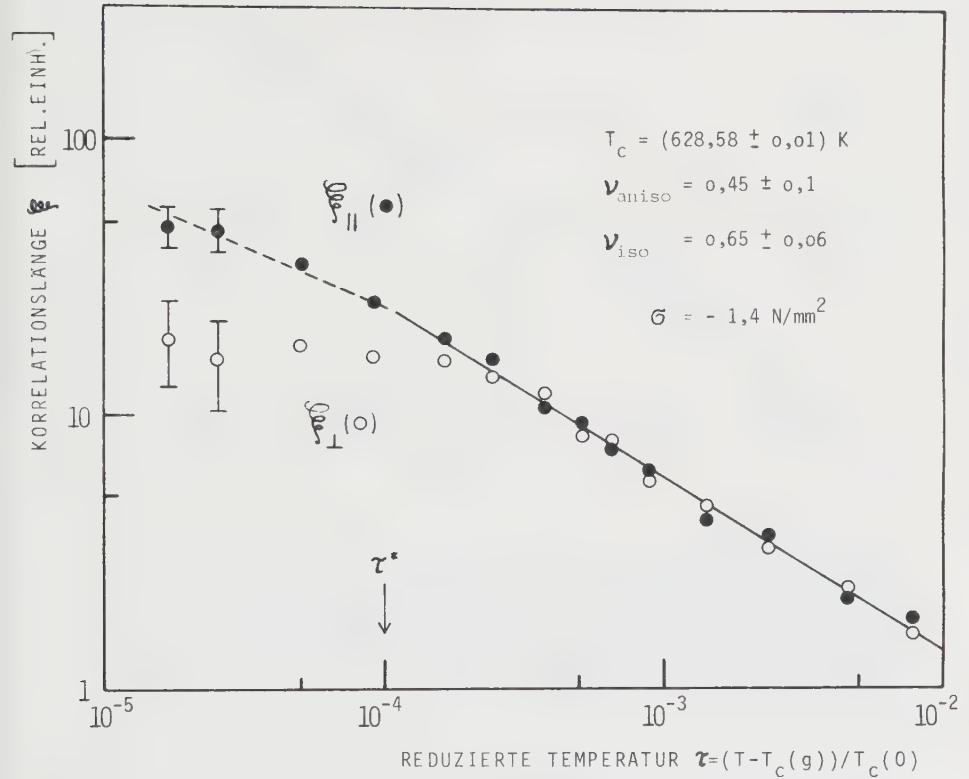


Abb. 5.8: Korrelationslänge ξ in Abhängigkeit von der reduzierten Temperatur für den $\langle 111 \rangle$ -orientierten Kristall mit einachsiger Druckspannung $\sigma_c = 1,4 \text{ N/mm}^2$. Eingezeichnet sind in den Bereichen oberhalb und unterhalb der Crossover-Temperatur τ^* die Fitgeraden und die resultierenden Werte für T_c , ν_{iso} , und ν_{aniso} . Aus dem Schnittpunkt der Fitgeraden ergibt sich die Crossover-Temperatur $\tau^* = (10 \pm 3) \cdot 10^{-5}$. Ausgewerteter Streuvektorbereich $1,9 \cdot 10^{-2} \leq q \leq 9 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$. Die Indices $||$ und $\perp$ beziehen sich auf die durch die Druckspannung bewirkte leichte und schwere Richtung der Magnetisierung.

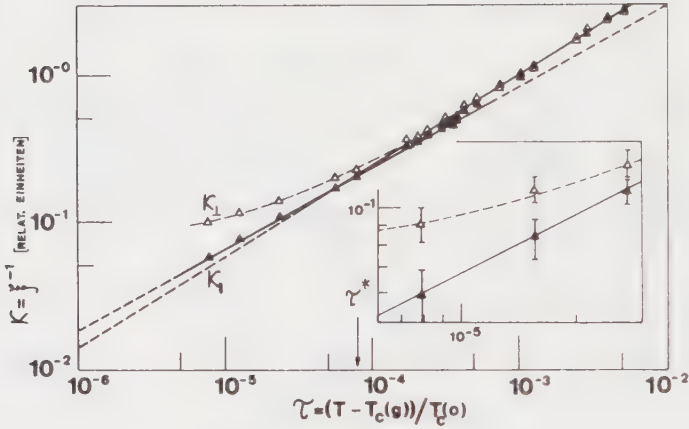


Abb. 5.9: Reproduktion von Abb.18 aus /30/:
 Temperaturabhängigkeit der inversen longitudinalen ($K_{||}$) und transversalen ($K_{\perp}$) Korrelationslänge des $\langle 111 \rangle$ -orientierten Kristalls für Zugspannung $\sigma_c = 1,4 \text{ N/mm}^2$.
 Die unterbrochenen Linien sind optische Orientierungshilfen, während die ausgezogenen Fits darstellen.

6. DISKUSSION DER ERGEBNISSE

4.

Die Experimente dieser und der vorangegangenen Arbeit /30/ liefern erstmals die nachfolgend diskutierten Aspekte des kritischen Verhaltens von Nickel - und sie können dabei durchaus so gesehen werden, daß sie im Hinblick auf ihre theoretische Behandlung mehr Fragen eröffnen als beantworten.

Das gilt zunächst für das Resultat zur Curiepunktsverschiebung in Abhängigkeit von einachsiger Spannung σ . Die Richtung und Amplitude der Verschiebung sind zwar keine universellen Größen im Konzept der Phasenumwandlungen, aber die hier an Nickel beobachtete Tendenz ist offenbar in diesem Punkt mit der für lokalisierte Spinmomente vorhandenen Theorie nicht in Einklang zu bringen (siehe Kap. 2.2). Die definitiv auf Nickel bezogene theoretische Beschreibung steht noch völlig aus. Am Rande ließe sich dazu vermerken, daß Nickel auch mit seinem Verhalten bei isotropem Druck eine Sonderstellung einnimmt. Entgegen allen übrigen rein ferromagnetischen Elementen steigt hierbei seine Curietemperatur an. Zu dieser schon länger bekannten Tatsache war die theoretische Erklärung schwierig, ist aber inzwischen grundsätzlich möglich /19/.

Auch die weiteren Neutronenstreuexperimente mit der mikroskopisch orientierten Fragestellung nach der Anisotropie der Spinfluktuationen weisen auf schwierige Probleme hin, die nun im folgenden ausführlich diskutiert werden sollen. Dazu bietet sich an, in einer Reihenfolge nach den möglichen magnetischen Anisotropien vorzugehen.

6.1. Formanisotropie und Dipol-Dipol-Wechselwirkung

Die kritische magnetische Neutronenstreuung oberhalb T_c bei äußerem Feld $H = 0$ wird nicht von einem entmagnetisierenden Feld der Probe beeinflusst, im Gegensatz zu Magnetisierungsmessungen mit anderen Methoden. Zur Demonstration ist im folgenden Bild wiedergegeben, wie die kritische Suszeptibilität unter Berücksichtigung verschiedener Entmagnetisierungsfaktoren N bei einer Induktivitätsmessung erscheinen würde.

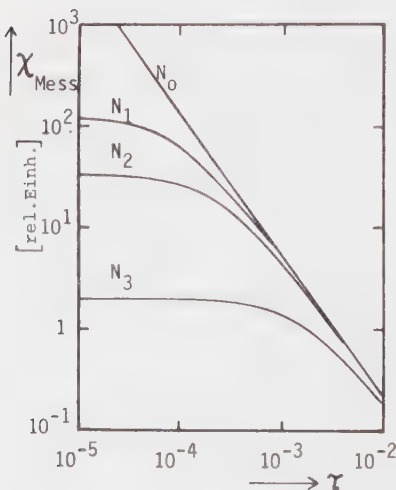


Abb. 6.1: Scheinbare Suszeptibilität χ_{Mess} für die Entmagnetisierungsfaktoren der verschiedenen Experimente.

Die Kurven entsprechen von oben nach unten:

- $N_0 = 0$ (Länge zu Durchmesser $l/d = \infty$),
- $N_1 = 0,008$ ($l/d = 15$), Experiment /30/,
- $N_2 = 0,03$ ($l/d = 6$), $\langle 100 \rangle$ -Kristall,
- $N_3 \approx 0,5 \hat{=} N_{\text{quer}}$ bei den Geometrien N_0 bis N_2 .

Selbst bei einer langgestreckten Probe, wie sie in /30/ verwendet wurde, mündet die gemessene Suszeptibilität χ_{Mess} in Längsrichtung schon bei $\tau \approx 10^{-4}$ in ihren konstanten Maximalwert ein. Der Effekt ist entsprechend drastischer für die Querkomponente in χ . Im Gegensatz zu diesem Verlauf belegen die Abb.19 in /30/ (die Korrelationslänge ξ verhält sich in diesem Sinne analog zu χ) und Abb. 5.6 in dieser Arbeit deutlich, daß für die aus kritischer Neutronenstreuung gewonnenen χ - und ξ -Werte keine Beeinflussung durch ein entmagnetisierendes Feld auftritt.

Diese Tatsache erscheint zunächst plausibel - denn der Außenraum der Probe ist feldfrei und die spontane Magnetisierung von Domänen kommt oberhalb von T_c als Ursache für innere Felder nicht in Betracht. Dennoch ist der Befund aus theoretischer Sicht nicht von vornherein selbstverständlich. Der damit angeschnittene Problemkreis der Dipol-Dipol-Wechselwirkung wird in verschiedenen Arbeiten von Aharony u.a. /48 - 50/ auf der Basis der direkten mikroskopischen Wechselwirkung zwischen den Spins behandelt. Dazu führen diese Autoren im Hamiltonoperator zusätzlich zur kurzreichweitigen Austauschwechselwirkung einen Term für die weitreichende Dipolwechselwirkung ein. Ihre Berechnungen mit einem Renormierungsgruppenansatz erbringen neben kritischen Exponenten folgenden Ausdruck für die fouriertransformierte wellenvektorabhängige Korrelationsfunktion $\tilde{G}(\vec{q})$:

$$\tilde{G}(\vec{q}) \propto \tau^{-\delta} \cdot \frac{\sum_{\alpha\beta} q^\alpha q^\beta / q^2}{1 + \xi^2 q^2} , \quad \xi \cdot q \ll 1 , \quad (6.1)$$

mit

α, β : Raumkoordinaten x,y,z .

Für den Grenzfall $q \rightarrow 0$ wird eine eigene Beziehung abgeleitet, welche die magnetostatische Suszeptibilität $\chi^{\alpha\beta}(q=0) \propto \tilde{G}^{\alpha\beta}(q=0)$ in bekannter Weise mit dem makroskopischen Entmagnetisierungsfaktor N verknüpft:

$$\frac{1}{\chi^{\alpha\alpha}} \propto A^{-1} \tau^{\delta} + B N^{\alpha} \quad , \quad (6.2)$$

mit $\chi^{\alpha\alpha}$: Tensor der Suszeptibilität,
 A, B : Temperaturunabhängige Koeffizienten .

Gleichung (6.1) ist identisch mit dem Ornstein-Zernike-Ausdruck (2.29) in Kap. 2.3., abgesehen vom zusätzlichen Term $(\delta_{\alpha\beta} - q^{\alpha} q^{\beta} / q^2)$. Dieser Faktor beschreibt eine Winkelabhängigkeit der Korrelationsfunktion in der Art und Weise, daß "longitudinale" Fluktuationen mit Gesamt-Spinvektor $\vec{S} \parallel \vec{q}$ unterdrückt werden. Dies steht im Einklang mit der Tatsache, daß ein entmagnetisierendes Feld die makroskopische Magnetisierung abschwächt.

Wie sich der Zusatzterm quantitativ auswirkt, hängt vom Verhältnis Dipolwechselwirkung zu Austauschkopplung ab. Nickel hat in diesem Sinne eine große Austauschwechselwirkung, entsprechend einer relativ hohen Curietemperatur. In /48/ wird in Molekularfeld-Näherung der Einfluß der Dipolwechselwirkung in Nickel auf T_C abgeschätzt. Er bringt eine Erhöhung von T_C um etwa +0,02 K, das heißt, eine relative Erhöhung von nur $3 \cdot 10^{-5}$.

Dementsprechend kann sich die Dipolwechselwirkung im kritischen Bereich überhaupt erst auswirken, wenn die Fluktuationen eine bestimmte Größe überschreiten. Für diese Schwelle wird ein

Crossover erwartet von isotropem Heisenberg- zu anisotropem Dipol-Verhalten. Die Übergangstemperatur läge bei Nickel im Bereich $\tau \approx 3,4 \cdot 10^{-4}$. Jenseits der Crossover-Schwelle, bei weiterem Annähern an T_c , erhöht sich der kritische Exponent γ , von $\gamma_{\text{Heisenberg}} = 1,33$ zu $\gamma_{\text{Dipol}} = 1,36$. Das bedeutet, trotz Einbeziehung einer weit reichenden Wechselwirkung, verändert sich der Exponent in einer Richtung, die vom Molekularfeld-Wert $\gamma=1$ wegführt. Dieses Ergebnis ist zum einen entgegen der Erwartung (siehe dazu /51/), zum anderen aber auch an der Grenze der experimentellen Möglichkeiten. Auch in der vorliegenden Arbeit sind die Fehlergrenzen nicht eng genug, um zu diesem Punkt Aussagen zuzulassen.

Bei noch weiterer Annäherung an T_c , für $\tau \ll \tau_{\text{Dipol-Crossover}}$, postulieren Fisher u.a. /48/, daß $\chi(\vec{q})$ einem oberen Grenzwert zustrebt, der analog ist zum Ausdruck (6.2). Dann also ist die Suszeptibilität wieder maßgeblich beeinflusst von der äußeren Form der Probe. Das ist unmittelbar verständlich, da sich ja die Fluktuationen näher an T_c theoretisch bis in die Größenordnung der Probe ausdehnen, und schließlich durch deren Abmessungen begrenzt werden.

Mit diesem Überblick sollte herausgestellt werden, daß die Theorie für $\chi(\vec{q})$ in den beiden Grenzfällen $q \rightarrow 0$ und $\tau \rightarrow 0$ die übliche Abhängigkeit vom Entmagnetisierungsfaktor N angibt, auch wenn keine äußeren Felder vorhanden sind. Die vorliegenden Streudaten zeigen jedoch keinen Einfluß eines entmagnetisierenden Feldes, denn sie wurden aus Messungen mit zwar sehr kleinen, aber endlichen q -Werten (und τ -Werten) gewonnen.

6.2. Spannungsanisotropie

Der richtungsabhängige magnetische Anteil der Freien Energiedichte F eines elastisch verzerrten Gitters setzt sich zusammen aus Kristallenergie F_K und Spannungsenergie F_σ , die ihrerseits in komplizierter Weise von Kristallanisotropiekonstanten K_i und Magnetostriktionskonstanten $\lambda_i \equiv \Delta l/l$ abhängen /52/. Die analytische Form dieser Energiedichte, in den Komponenten von Spannungs- und Verzerrungstensor ausgedrückt, läßt sich aus reinen Symmetriebetrachtungen ableiten. Hingegen lassen sich die abso-
luten und der Messung zugänglichen Größen der Koeffizienten K_i und λ_i bisher nicht aus theoretischen Modellen herleiten. Insbesondere hat sich gezeigt, daß der Ansatz, die K_i 's durch Dipol-Wechselwirkung der Spins zu erklären, viel zu kleine Werte liefert. Diese Wechselwirkung kann also nicht die wesentliche Ursache der Kristallanisotropie sein.

Bei endlicher Größe der Magnetostriktion, wenn also $dl/dH \neq 0$, wird die spontane Magnetisierung grundsätzlich durch elastische Spannungen beeinflusst. Unter bestimmten Vereinfachungen (u.a. $\lambda_S = \lambda_{100} = \lambda_{111}$) gilt für ein kubisches Gitter folgende Beziehung für die richtungsabhängige Spannungsenergiedichte F_σ :

$$F_\sigma = \frac{3}{2} \lambda_S \sigma \cos^2 \varphi, \quad (6.3)$$

mit

- λ_S : Isotrope Sättigungsmagnetostriktionskonstante,
- σ : Homogene äußere Spannung,
- φ : Winkel zwischen Magnetisierungs- und Spannungsrichtung .

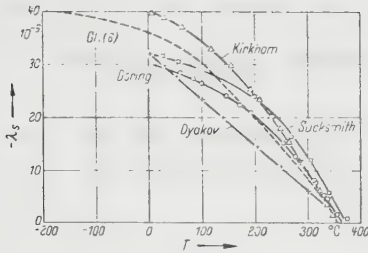


Abb. 6.2: Temperaturabhängigkeit der Sättigungsmagnetostraktion λ_S von vielkristallinem Nickel nach verschiedenen Messungen /52/. Die gestrichelte Kurve wurde anhand von Meßwerten errechnet /15/.

Abb. 6.2 zeigt, daß $|\lambda_S|$ nahe T_C gegen Null abnimmt, insoweit der spontanen Magnetisierung M ähnlich. Für einen gewissen Temperaturbereich (300 K bis 450 K) gilt auch eine empirische Relation $\lambda_S \propto M^2$. Es gibt aber insgesamt keinen einfach zu beschreibenden Zusammenhang zwischen λ_S und M , weil der hier pauschal verwendete Begriff 'Magnetostraktion' verschiedene und komplizierte Komponenten beinhaltet.

Analog zu der Vorstellung, daß eine Fluktuation oberhalb T_C ein Bereich mit einer momentanen spontanen Magnetisierung ist, kann angenommen werden, daß sich in diesem Bereich eine magnetostruktive Wechselwirkung ausbildet. Somit verursacht auch im kritischen Bereich oberhalb T_C eine elastische Verzerrung die ihr entsprechenden leichten und schweren Richtungen der Magnetisierung. Für eine Größenangabe der Koeffizienten λ_i existieren hier jedoch keinerlei Meßwerte. Um wenigstens eine obere Schranke für die Spannungsanisotropie zu gewinnen, soll eine Abschätzung mit dem größten möglichen Wert von λ_S (für $T = 0$) gegeben werden. Dieser Ansatz wird suggestiv unterstützt von der Vorstellung, daß im Kern einer Fluktuation trotz der endlichen thermischen Energie eine parallele

Orientierung der Spins wie am absoluten Nullpunkt der Temperatur entstanden ist. Unter dieser Bedingung ergibt Gleichung (6.3)

$$|F_g| = 8,4 \cdot 10^2 \text{ erg/cm}^3, \quad \text{wobei eingesetzt wurde:}$$

$$\begin{aligned} |\lambda_s(T=0)| &= 40 \cdot 10^{-6}, \\ \sigma_c &= 1,4 \text{ N/mm}^2, \\ \cos \varphi &= 1. \end{aligned}$$

Mit diesem Ergebnis lassen sich nun weitere Größen bestimmen, die für den Phasenübergang unter elastischer Spannung maßgeblich sind. Sie werden entsprechend ihren Definitionen in /6,53/ im folgenden zusammengestellt.

6.2.1. Erwartungswerte für ein Crossover durch Spannungsanisotropie

Mit den Parametern Gitterdimension $d=3$, Spindimension $n=3$ und Spin $1/2$, lassen sich folgende Größen berechnen:

- Anisotropieparameter

$$g = F_g / F_A = 3 \cdot 10^{-6}, \quad \text{nach (2.4)}$$

mit

$$\begin{aligned} F_g &= 8,4 \cdot 10^2 \text{ erg/cm}^3, \\ F_A &= 3 \cdot 10^8 \text{ erg/cm}^3 \text{ (Austausch_energiedichte nach /52/).} \end{aligned}$$

- T_C -Verschiebung

$$T_C(g) - T_C(0) = T_C(0) \cdot w \cdot |g|^{1/\Psi} = 2 \cdot 10^{-2} \text{ K}, \quad \text{nach (2.14)}$$

mit

$$\begin{aligned} w &\approx 0,9 \text{ (nicht-universelle "Shift"-Amplitude für fcc-Gitter/53/),} \\ \Psi &= 1,25 \text{ (Shift-Exponent } \equiv \text{ Crossover-Exponent } \emptyset \text{) /53/}. \end{aligned}$$

- Crossover-Temperatur

$$\tau^* = D \cdot g^{1/0} = 4 \cdot 10^{-5} \quad , \quad \text{nach (2.7)}$$

mit

$$D \approx 1 \text{ (nicht-universelle Amplitude) /53/}.$$

- Maximale transversale Korrelationslänge

$$\hat{\xi}_\perp = \xi_0 \cdot g^{-\nu/0} = 115 \text{ nm} \quad , \quad \text{nach (2.8)}$$

mit

$$\nu = 0,67 \text{ (Exponent der Korrelationslänge im isotropen Bereich /9/),}$$

$$\xi_0 \approx 0,12 \text{ nm (nicht-universelle Amplitude /8/).}$$

6.2.2. Vergleich zwischen Experiment und Theorie

Die soweit berechneten Größen lassen sich mit den experimentellen Resultaten vergleichen:

Tab. 6.1:

	Theorie	Experiment <100>	Experiment <111>
T_c -Verschiebung $\Delta T_c(\xi_c)$	$+2 \cdot 10^{-2} \text{ K}$	$-(1,1 \pm 0,3) \cdot 10^{-2} \text{ K}$	- -
Crossover-Temperatur τ^*	$4 \cdot 10^{-5}$	$(9 \pm 3) \cdot 10^{-5}$	$(10 \pm 3) \cdot 10^{-5}$
Maximale Korrelationslänge $\hat{\xi}_\perp$	115 nm	$\sim 75 \text{ nm}$	$\sim 70 \text{ nm}$

Wenn man die insgesamt erheblichen Näherungen bedenkt, mit dem λ_s -Wert für die Temperatur $T=0$, und mit den nur größenordnungs=

mäßig bekannten Amplituden, dann ist die Annäherung zwischen theoretischen und experimentellen Zahlenwerten sehr eindrucksvoll. Insbesondere ist hierbei noch anzumerken, daß die theoretischen Beziehungen auf Modellrechnungen für lokalisierte Spinnomente beruhen, und daß soweit ohne Begründung vorausgesetzt wurde, daß diese Modelle für Nickel im kritischen Gebiet anwendbar sind. Das trifft offenbar für die T_C -Verschiebung keinesfalls zu. Sie liegt zwar in der richtigen Größenordnung, aber in entgegengesetzter Richtung, sodaß der betragsmäßigen Übereinstimmung wohl keine Bedeutung zukommt. (Siehe Kap. 6.4).

Zunächst soll als Ergebnis dieses Kapitels festgehalten werden, daß der Versuch, den unter einachsigen Zug bzw. Druck beobachteten Crossover durch Spannungsanisotropie zu erklären, zu einer bemerkenswerten Übereinstimmung mit theoretischen Voraussagen kommt. Bewußt ist hier noch die Diskussion der kritischen Exponenten ausgespart, die im Kap. 6.5 gesondert behandelt werden.

6.3. Kristallanisotropie

Die Frage nach den Auswirkungen der Kristallanisotropie im kritischen Bereich stellt ein erhebliches Problem dar, das weit weniger definitive Aussagen zuläßt, als sie in den vorigen Kapiteln möglich waren. Das liegt nicht zuletzt an den wiederum fehlenden Vergleichsmöglichkeiten mit theoretischen oder experimentellen Aussagen für die Kristallanisotropiekonstanten K_i im Bereich $\gamma \approx 10^{-3}$.

Dieser Mangel wirkt hier noch schwerer als im Falle der Spannungsanisotropie, weil durch die absoluten Werte und die relativen Verhältnisse der Konstanten K_i (und λ_i) vielfältige und sehr unterschiedliche Konfigurationen der leichten und schweren Magnetisierungsrichtungen verursacht werden (siehe das Schema in /52/ S.182).

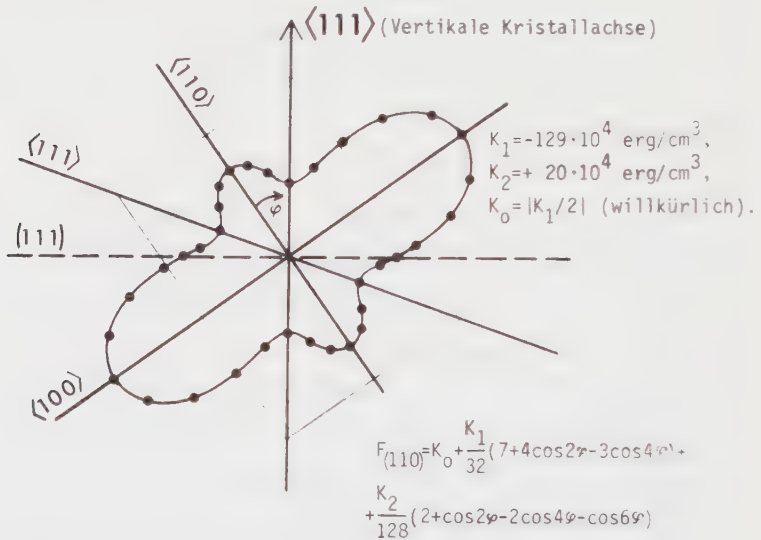
Trotzdem ergibt sich zunächst eine eindeutige und unerwartete Schlußfolgerung. Die Abschätzung der Kristallanisotropie unter Verwendung der K_i -Werte für Temperatur $T=0$ (analog zum Verfahren für die Spannungsanisotropie) führt nun zu eklatantem Widerspruch mit den vorliegenden experimentellen Ergebnissen. Es wäre nämlich bei Temperatur $T=0$ in Nickel $\langle 111 \rangle$ eine ausgeprägte leichte Richtung, und $\langle 100 \rangle$ eine schwere Richtung. Die Neutronenstreuexperimente wurden an zwei Kristallen mit den entsprechenden Orientierungen durchgeführt. Dabei ergaben sich für die beiden unbelasteten Kristalle ungefähr gleiche Streuintensitäten in vertikaler und horizontaler Richtung, und damit ein qualitativer Hinweis, daß keine Anisotropien wie bei $T=0$ vorhanden sind.

Im folgenden sollen diese Überlegungen genauer ausgeführt werden. Abb. 6.3 stellt dazu die für $T=0$ berechneten winkelabhängigen Anteile der Anisotropieenergiedichten jeweils in den entsprechenden Streuebenen dar. Zugrundegelegt wurden Meßwerte aus /54/ für

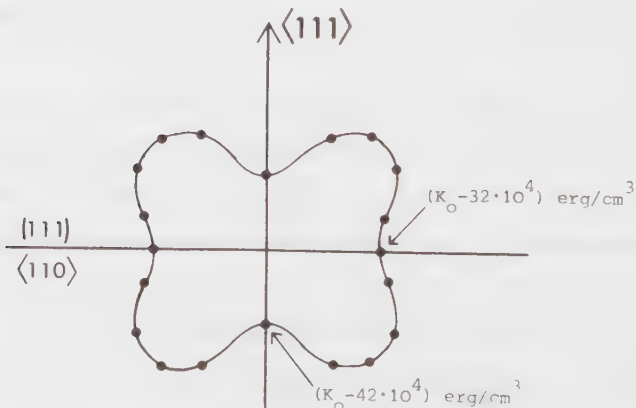
$$\begin{aligned} K_1 &= -129 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3 & (T=0), & \quad \text{und} \\ K_2 &= +20 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3 & (T=0). \end{aligned}$$

Die Bilder sind nach den Angaben in /55/ errechnet. Die zwei Figuren zu jeder der beiden Orientierungen $\langle 100 \rangle$ und $\langle 111 \rangle$

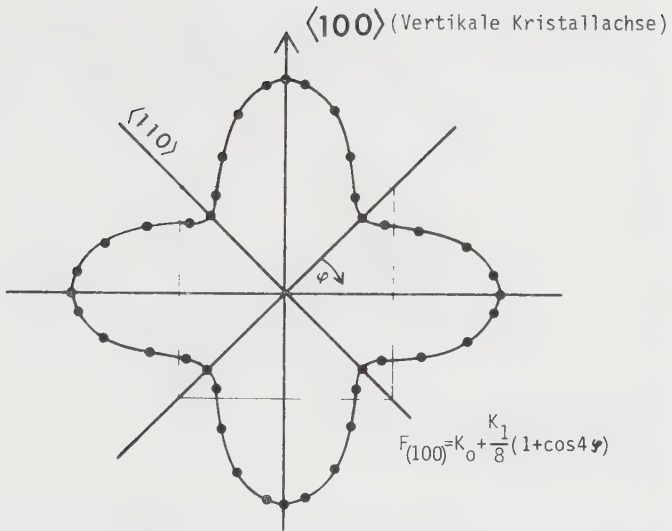
Abb. 6.3: Kristallanisotropie in den für die Neutronenstreuemessungen relevanten Gitterebenen. (Zeichenebene parallel zur Detektorebene und senkrecht zu $\vec{k}$).



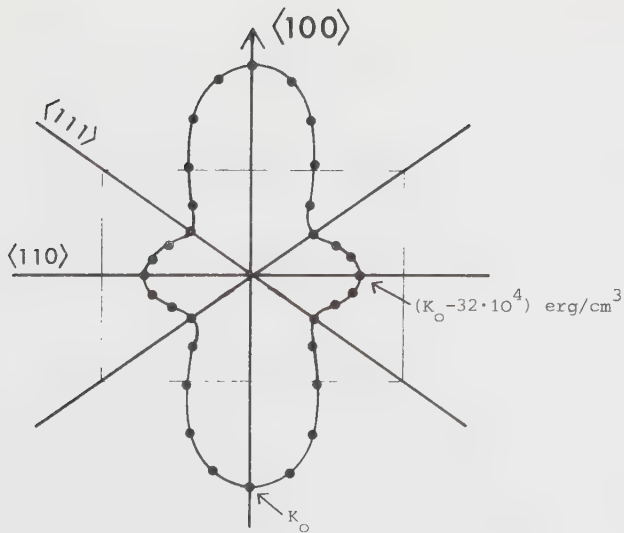
- a) $\langle 110 \rangle$ -Ebene, eine Ebene maximaler Anisotropie. Drehung von 60° um $\langle 111 \rangle$ liefert eine an der Horizontalachse gespiegelte Konfiguration, Drehung um 120° wieder deckungsgleiche Figur.



- b) $\langle 211 \rangle$ -Ebene minimaler Anisotropie nach 30° -Drehung gegenüber Bild a) um die vertikale $\langle 111 \rangle$ -Achse.



c) $\langle 100 \rangle$ -Ebene.



d) $\langle 110 \rangle$ -Ebene, nach 45° -Drehung gegenüber Bild c) um die vertikale $\langle 100 \rangle$ -Achse.

stellen die möglichen Extremfälle der Kristallenergiedichte-Diagramme dar. Alle weiteren Konstellationen bei Drehung um die vertikale Achse sind Übergangsformen zwischen den beiden Figuren.

Aus den Abbildungen werden die beträchtlichen Unterschiede in den Beträgen der Kristallanisotropie ersichtlich. Die Spannungs-anisotropiedifferenzen mit den Werten wie im vorigen Kapitel lägen hier innerhalb der Strichstärke.

Im einzelnen ist abzulesen, daß beim $\langle 111 \rangle$ -orientierten Kristall die Kristallenergiedichte bei Drehung um die Längsachse, in vertikaler und horizontaler Richtung nahezu gleichbleibt. (Die $\langle 111 \rangle$ -Ebene ist eine fast isotrope Ebene mit $\Delta F_k \approx 2 \cdot 10^3 \text{ erg/cm}^3$). Zugleich sind vertikale und horizontale Richtung magnetisch verhältnismäßig leichte Richtungen.

Bei den Neutronenstreuemessungen in /30/ wie auch bei den vorliegenden am $\langle 111 \rangle$ -Kristall war die Orientierung bezüglich des Drehwinkels um die Längsachse nicht bekannt (Kap. 5.6). Die Abb. 6.4 (dort die gestrichelte Kontur für $\Theta=0$) läßt sich jedoch zwanglos so interpretieren, daß sie qualitativ der Anisotropiekonfiguration aus Abb. 6.3b entspricht. (Die leichten und schweren Richtungen aus Abb. 6.3b müssen um 90° in der Zeichenebene gedreht werden, um die Intensitätsverteilungen im Multidetektor zu erhalten. Dies folgt aus den Beziehungen in Kap. 2.4. Außerdem liegen Maxima und Minima in den beiden Darstellungen zueinander vertauscht, weil in einer leichten Richtung die größere Streuintensität resultiert.)

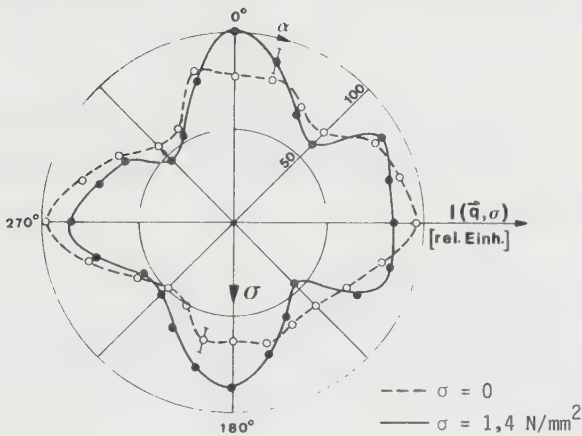


Abb. 6.4: Reproduktion von Abb.16 aus /30/:
Polardiagramm der gemessenen Intensitäten an einem $\langle 111 \rangle$ -orientierten Kristall für $\vec{q} = 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$ in der Ebene des Multidetektors, bei $T = 9 \cdot 10^{-5}$ für $\sigma = 0$ und $T = 8 \cdot 10^{-5}$ für $\sigma \neq 0$.

Im nächsten Schritt sollen die quantitativen Verhältnisse zwischen den Maxima und Minima in den Diagrammen näher untersucht werden. Unabhängig davon, ob die Annahme der grundsätzlichen Übereinstimmung zutrifft, sind gerade die beiden Diagramme in den Abb. 6.4 und 6.3b besonders geeignet, nun auch die Diskrepanz aufzuzeigen, auf die die Argumentation dieses Kapitels hinauslaufen wird. In jedem Falle bedeutet nämlich die Konfiguration der Abb. 6.3b die der minimalen möglichen Anisotropie (für $T=0$), während demgegenüber Abb.6.4 unter den experimentellen Streufiguren die maximale beobachtete Kristallanisotropie repräsentiert.

Mit dem anschließenden Vergleich der beiden Diagramme kann deshalb zwingend belegt werden, daß die sich in den Messungen auswirkende Kristallanisotropie viel zu klein ist, um mit den großen Absolut-

werten der Koeffizienten K_i für $T=0$ richtig beschrieben werden zu können.

Aus Abb. 6.3b läßt sich zwischen vertikaler und diagonaler Achse die größte auftretende Differenz der Anisotropieenergiedichte (für $T=0$) ablesen zu

$$\Delta F_K \approx 22 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3 .$$

Analog zum Verfahren in Kap. 6.2.1 ergibt sich daraus rechnerisch der Anisotropieparameter

$$g \approx 0,73 \cdot 10^{-3} ,$$

die Crossover-Temperatur

$$\tau^* \approx 3,1 \cdot 10^{-3} ,$$

sowie die maximale Korrelationslänge in der diagonalen schweren Richtung (s.R.)

$$\xi_{s.R.} \approx 6 \text{ nm} .$$

Damit können für die reduzierte Temperatur $\tau \approx 1 \cdot 10^{-4}$ (des Polar=diagramms in Abb. 6.4) die Erwartungswerte für zwei charakteristische Korrelationslängen angegeben werden: Für die diagonale Achse (s.R.) ungefähr der Wert der maximalen Länge $\xi_{s.R.} \approx 6 \text{ nm}$, und für die vertikale Achse (eine leichte Richtung l.R.) aus Abb. 2.1 der Wert $\xi_{l.R.} \approx 50 \text{ nm}$. Nach Gleichung (2.24) kann dann das gegenseitige Verhältnis der Intensitäten in den beiden Richtungen bestimmt werden (mit $q = 1 \cdot 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$):

$$I_{s.R.} = c \cdot \frac{1}{\left(\frac{1}{6}\right)^2 + 10^{-4}} = c \cdot 36 \quad ,$$

$$I_{l.R.} = c \cdot \frac{1}{\left(\frac{1}{50}\right)^2 + 10^{-4}} = c \cdot 2000 \quad .$$

Dem so berechneten großen Unterschied in den Streuintensitäten von $I_{l.R.}/I_{s.R.} \approx 56$ steht das aus Abb. 6.4 herauszulesende viel kleinere Verhältnis von $I_{\max}/I_{\min} \approx 100/50 = 2$ als der größte gemessene Wert gegenüber.

Zuguterletzt kann mit Blick auf die beiden Konturen für $\sigma = 0$ und für σ_c der Abb. 6.4 die Schlußfolgerung auch so formuliert werden, daß nach der Abschätzung der Intensitätsverhältnisse unter Annahme von K_i -Koeffizienten für $T=0$ die Kristallanisotropie um mindestens eine Größenordnung stärker in die Streufiguren eingehen müßte, als der Effekt einer äußeren elastischen Spannung.

In umgekehrter Betrachtungsweise kann auch auf eine obere Schranke für die beobachtete Kristallanisotropie geschlossen werden. Die Differenz der Intensitäten bei $\sigma = 0$ ist höchstens doppelt so groß wie die Änderung durch die elastische Spannung. Als erste Näherung läßt sich infolgedessen mit $F_0 = 8,4 \cdot 10^2 \text{ erg/cm}^3$ auf $F_K^{\text{exp}} \approx 2 \cdot 10^3 \text{ erg/cm}^3$ schließen. Dieser Wert dürfte eine echte obere Schranke sein, da ja die Spannungsanisotropie mit dem maximalen möglichen $\lambda_s(T=0)$ berechnet wurde, und ein kleinerer tatsächlicher Wert von λ_s , F_K^{exp} ebenso verringern würde.

6.4. Mögliche allgemeinere Folgerungen für das kritische Verhalten von Nickel

In den vorangegangenen Kapiteln wurde hervorgehoben, daß die gemessenen Effekte der Kristall- und Spannungsanisotropie im kritischen Bereich zunächst nicht in übereinstimmender Weise zu deuten sind. Die aufgezeigte Diskrepanz kann jedoch in völlig anderem Licht gesehen werden, wenn das Temperaturverhalten der magnetischen Konstanten λ_s und K_1 in eine Interpretation einbezogen wird.

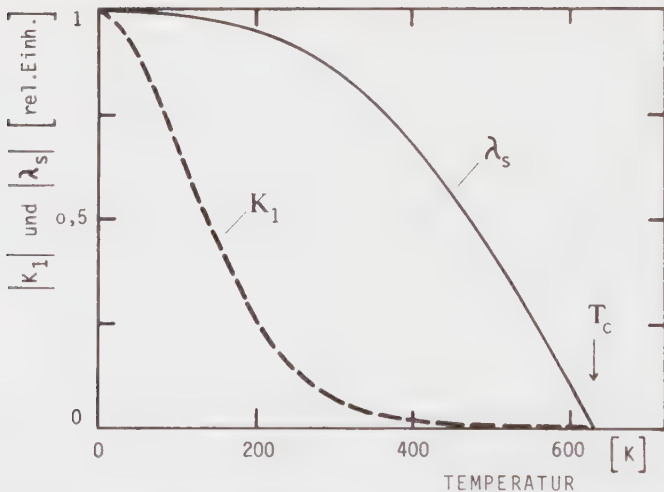


Abb. 6.5: Temperaturabhängigkeit der Kristallanisotropiekonstanten K_1 und der Sättigungsmagnetostraktionskonstanten λ_s für Nickel nach /52/. Beide Größen sind für $T=0$ auf den Wert 1 normiert.

Nach Abb. 6.5 ist der Verlauf für $|\lambda_s|$, global gesehen, etwa dem der spontanen Magnetisierung M_s ähnlich, also mit wenig Veränderung bei tiefen Temperaturen. Ganz anders dagegen fällt

$|K_1|$ proportional M_s^n mit $n \approx 50$ (!) drastisch mit wachsender Temperatur ab /60/.

Dieses eklatant unterschiedliche Verhalten von magnetischen Konstanten der gleichen Substanz, die zudem auf dieselbe Ursache der Spin-Bahn-Kopplung zurückgehen, ist seit langem Gegenstand der theoretischen Diskussion /56,60/. Eine geschlossene Darstellung dazu ist bislang nicht möglich. Nach /57/ könnte Nickel eine komplexere als die bestehenden Theorien erfordern, in der die jeweils starken Kopplungen der Bahn- bzw. Spinmomente untereinander durch getrennte Bewegungsgleichungen, mit je einem zusätzlichen Kopplungsterm für die Spin-Bahn-Kopplung, beschrieben werden. Damit wäre möglicherweise die Magnetostraktion im wesentlichen dem Spinsystem, die Anisotropie hingegen dem Bahnsystem zuzuschreiben, während der Kopplungsterm die komplizierten gegenseitigen Einflüsse der Konstanten /58/ erfassen könnte.

Aber allein durch die gemessene Temperaturabhängigkeit der Konstanten in Abb. 6.5 bietet sich nun folgender Hinweis auf mögliche Verhältnisse im kritischen Bereich: Oben wurde für den Kern einer Spinfluktuation eine momentane Parallelstellung der Spins postuliert, wobei dann die lokale Umgebung eines Spins derjenigen bei $T=0$ ähnlich wird. Dies ist offenbar eine zu starke Vereinfachung. Die Spindichteverteilung im Kern einer Fluktuation dicht an T_c dürfte eher Ähnlichkeit mit einer solchen für tiefe, aber endliche Temperaturen aufweisen.

In diesem Sinne ist der Abb. 6.5 zu entnehmen, daß sich beispielsweise bis zu $T \approx \frac{1}{2}T_c$ der Koeffizient $|\lambda_s|$ nur um 1/4 seines Wertes für $T=0$ verringert, während sich $|K_1|$ mindestens auf 1/20 seines Anfangswertes verkleinert hat. Damit sind qualitativ die Relationen gegeben, die den experimentellen Ergebnissen der vorliegenden Arbeit entsprechen.

Eine über diese Feststellung hinausgehende quantitative Erörterung erscheint allerdings mit den gegebenen Daten nicht sinnvoll. Denn hier ist zu bedenken, daß die im Experiment für $\sigma = 0$ registrierte Anisotropie nicht ausschließlich Kristallanisotropie wie im idealen Kristall sein wird, (die dann auch nicht nur durch K_1 allein zu beschreiben wäre). Die Ergebnisse lassen keine Aussage darüber zu, wieweit die tatsächliche Kristallanisotropie eventuell durch restliche Versetzungen des Einkristalls modifiziert wird (Versetzungsdichte $\approx 10^7 \text{ cm}^{-2}$). Dennoch sollte die in diesem Abschnitt gegebene Interpretation insgesamt eine plausible Erklärung für die gemessenen und zunächst in der Deutung weit auseinanderliegenden Anisotropieeinflüsse bieten können.

Ein anderes Problem beim Nickel liegt in der Ambivalenz seiner prinzipiellen magnetischen Beschreibung. In vielen wesentlichen Punkten muß Nickel im bandtheoretischen Formalismus betrachtet werden, in allererster Linie natürlich aufgrund seiner nicht-ganzzahligen effektiven Magnetonzahl $n_B=0,606$. Jedoch gerade im kritischen Bereich treten dabei Schwierigkeiten auf. Die Bandtheorie liefert keine kritischen Exponenten, und der in

ihrem Konzept berechnete Curiepunkt liegt um eine Größenordnung über dem tatsächlichen /59/. Hingegen stimmen die gemessenen isotropen Exponenten /10,27/ gut mit den Voraussagen eines lokalisierten Heisenberg-Modells überein /61/. Trotzdem stellt ein Modell lokalisierter Momente noch weniger als ein Bandmodell eine allgemein zutreffende Beschreibung für Nickel dar. Darauf weist möglicherweise auch die in dieser Arbeit ermittelte Abweichung der T_C -Verschiebung von den in Kap. 2.2. ausgeführten theoretischen Voraussagen hin.

Offensichtlich wird eine Entwicklung weiterführen, in der Bandverhalten und lokalisierte Momente als die beiden Grenzfälle einer umfassenderen Theorie erscheinen, und in der Nickel dann eine Zwischenstellung einnehmen könnte. In neueren Arbeiten /59,62/ werden verschiedene Ansätze in dieser Richtung diskutiert. Nach /59/ ergibt sich so mit der Annahme eines Austauschfeldes, das den Charakter einer Vektorgröße hat, und das im Prinzip an jedem Gitterplatz nach Größe und Richtung variieren kann, bereits eine sehr brauchbare Berechnung der Curietemperatur von etwa 1200 K.

6.5 Kritische Exponenten

Die Schwerpunkte der Experimente waren die Richtungsabhängigkeit der kritischen Neutronenstreuung einerseits, und die Curiepunktverschiebung unter Last andererseits. Beim ersten Punkt brachte die richtungsspezifische Auswertung, beim zweiten die Meßmethode per se mit sich, daß die kritischen Exponenten nur mit großen Fehlerbreiten zu ermitteln waren. Angesichts genauerer Messungen /10,32,27/ sind die Ergebnisse nicht mehr primär interessant, sollen aber hier der Vollständigkeit wegen aufgeführt werden.

Tab. 6.2: Kritische Exponenten χ und ν (n : Zahl der Spinkomponenten)

	χ_{isotrop}	$\chi_{\text{anisotrop}}$	ν_{isotrop}	$\nu_{\text{anisotrop}}$
EXPERIMENT				
Neutronen= streuung	$1,34 \pm 0,08$	--	Abb. 5.6	Abb.
	$1,36 \pm 0,06$	$1,1 \pm 0,2$	5.7	$0,65 \pm 0,06$
				$0,45 \pm 0,1$
Induktions= methode	$1,39 \pm 0,08$	--	4.4	
THEORIE				
	n=3: $1,365 /16/$	--	n=3: $0,688 /16/$	--
	$1,375 \pm 0,02 /17/$	n=2: $1,315 \pm 0,01 /18/$	$0,702 \pm 0,02 /17/$	--
		n=1: $1,23 /19/$		

Die theoretisch zu erwartenden Unterschiede zwischen isotropen und anisotropen Exponenten sind zu klein, um unter den vorliegenden experimentellen Bedingungen erkennbar zu werden. Daß die gemessenen anisotropen Exponenten deutlich unterhalb der theoretischen Erwartungswerte liegen, kann als Konsequenz der kleinen Crossover-Temperatur $\tau^* \approx 1 \cdot 10^{-4}$ angesehen werden. Bei diesem geringen Temperaturabstand zu T_c ist es offensichtlich nicht mehr möglich, daß sich die Fluktuationen ungehindert ausbreiten. Stattdessen zeigt sich allmählich der Einfluß der Störungen des Realkristalls und führt im allgemeinen zu einer "Abrundung" der bei T_c divergierenden Größen.

7. ZUSAMMENFASSUNG

In der vorliegenden Arbeit werden Experimente am ferromagnetischen Phasenumwandlungspunkt von Nickel diskutiert. Die Ergebnisse ermöglichen es, kritische Phänomene an Nickel unter aktuellen Konzepten für multikritisches Verhalten zu studieren. Dazu gehören die unter dem Einfluß einer schwachen magnetischen Anisotropie auftretenden Effekte, wie die Verschiebung der Umwandlungstemperatur und der Übergang des kritischen Verhaltens zu niedrigerer Symmetrie im Bereich zwischen Crossover-Temperatur und Curietemperatur.

Die schwache magnetische Anisotropie wurde durch mechanische einachsige Zug- und Druckspannung erzeugt, die systematisch innerhalb des elastischen Bereiches variiert wurde. Die Experimente wurden an zwei runden stabförmigen Nickel-Einkristallen mit $\langle 100 \rangle$ - und $\langle 111 \rangle$ -Orientierung in Längsrichtung durchgeführt.

Die Meßergebnisse geben zusätzlich Einblick in die bislang weder von der Theorie noch vom Experiment geklärten Anisotropieverhältnisse von Nickel im engeren kritischen Bereich $\tau \lesssim 10^{-3}$. Die wichtigsten Ergebnisse sind folgende:

1. Die Zahlenwerte der kritischen Exponenten γ_{iso} , γ_{aniso} , ν_{iso} und ν_{aniso} sind bestimmt worden, und in Tab. 6.2 aufgeführt. Die nicht-universellen Parameter Crossover-Temperatur τ^* und Korrelationslänge $\hat{\xi}_{\perp}$ in schwerer Richtung sind in Tab. 6.1 angegeben.

Das Ermitteln der genauen Zahlenwerte der Exponenten war nicht Schwerpunkt der Arbeit. Die von der Theorie vorausgesagten geringen Änderungen der Exponenten beim Übergang zum anisotropen System können aus den Meßdaten nicht verifiziert werden.

2. Neutronen-Kleinwinkelstreudaten wurden in den durch die mechanische Spannung erzeugten leichten und schweren Richtungen (parallel und senkrecht zur Längsachse der Probe) analysiert. Für beide Kristalle ergibt sich in gleicher Weise:
- Eine Formanisotropie ist in den Streudaten nicht sichtbar (Messung im äußeren Feld $H < 1 \text{ A/m}$), in Übereinstimmung mit der Erwartung von der Theorie her.
 - Die Spannungsanisotropie wirkt sich dicht bei T_c deutlich in einer Reduzierung von Suszeptibilität und Korrelationslänge in der magnetisch schweren Richtung aus. Da keine theoretischen und experimentellen Daten zur Magnetostriktion für den untersuchten kritischen Bereich vorliegen, wird eine Modellrechnung auf der Basis der Koeffizienten für $T=0$ durchgeführt. Dies ergibt gute Übereinstimmung der berechneten mit den experimentellen Ergebnissen von Crossover-Temperatur ($T^* = 9,5 \cdot 10^{-5}$) und Korrelationslängen in den leichten und schweren Richtungen.
 - Der Einfluß der Kristallanisotropie dicht an T_c ($T \approx 10^{-4}$) ergibt sich aus den Messungen als von maximal gleicher Größe wie der der Spannungsanisotropie. Dieses Ergebnis kann nicht mehr mit einem Ansatz unter Verwendung der für $T=0$ gültigen Parameter erklärt werden. Das weist möglicherweise darauf hin, daß im Inneren der Fluktuationen momentan Verhältnisse bezüglich der Spinordnung vorliegen, die denen bei tiefen, aber

endlichen Temperaturen entsprechen.

3. Durch Suszeptibilitätsmessungen mittels Induktionsmethode konnte die Curiepunktsverschiebung bei schrittweiser Veränderung von elastischer Druck- und Zugspannung gemessen werden. Dabei wurde innerhalb der engen Fehlergrenzen kein Einfluß der einachsigen Spannung auf Amplitude und Exponent der gemessenen Anfangssuszeptibilität festgestellt.

Im Gegensatz zu den bestehenden Theorien für lokalisierte Spinmomente zeigt Nickel eine lineare T_C -Verschiebung nach tieferen Temperaturen. Die nahezu gleichgroße Verschiebung unter Zug und Druck in $\langle 100 \rangle$ -Richtung beträgt $-(7,5 \pm 3) \cdot 10^{-3} \text{ K/N/mm}^2$.

LITERATURVERZEICHNIS

- /1/ H.E.Stanley, Introduction to Phase Transitions and Critical Phenomena, Clarendon Press, Oxford 1971
- /2/ W.Gebhardt, U.Krey, Phasenübergänge und kritische Phänomene, Vieweg Verlag, Braunschweig 1980
- /3/ K.Stierstadt, Physik. Blätter 30, 9 und 106 (1974)
- /4/ M.E.Fisher, Phys.Rev.Lett.16, 11 (1966)
R.B.Griffiths, Phys.Rev.Lett.24, 1479 (1970)
- /5/ L.D.Landau, E.M.Lifshitz, Statistical Physics, Pergamon Press, New York 1968
- /6/ E.Riedel, F.Wegner, Z.Phys.225, 195 (1969)
- /7/ K.G.Wilson, Phys.Rev.B 4, 3174 und 3184 (1971)
- /8/ R.Anders, K.Stierstadt, Solid State Commun.39, 185 (1981)
- /9/ F.Söffge, K.Stierstadt, Neutron Inelastic Scattering 1977, Vol.II, p.259. IAEA Vienna (1978)
- /10/ N.Herzum, K.Stierstadt, L.Wunsch, Phys.Status Solidi A 21, 529 (1974)
- /11/ M.A.Kobeissi, R.Suter, A.M.Gottlieb, C.Hohenemser, Phys.Rev.B 11, 2455 (1975)
- /12/ S.Mader, A.Seeger, C.Leitz, J.Appl.Phys.34, 3368 (1963)
- /13/ E.Riedel, F.Wegner, Phys.Rev.B 9, 294 (1974)
- /14/ S.Singh, D.Jasnow, Phys.Rev.B 12, 493 (1975)
- /15/ W.D.Corner, F.Hutchinson, Proc.Phys.Soc.London 72, 1049 (1958)

- /16/ A.D.Bruce, A.Aharony, Phys.Rev.B 10, 2078 (1974)
- /17/ D.S.Ritchie, M.E.Fisher, Phys.Rev.B 5, 2668 (1972)
- /18/ R.Shanker, R.A.Singh, Z.Naturforschung 31A, 34 (1976)
- /19/ D.R.Nelson, E.Domany, Phys.Rev.B 13, 236 (1976)
- /20/ A.D.Bruce, A.Aharony, Phys.Rev.B 11, 478 (1975)
- /21/ L.S.Ornstein, F.Zernike, Physik.Z.19, 134 (1918)
und Physik.Z.27, 761 (1926)
- /22/ C.Kittel, Quantentheorie der Festkörper,
Oldenbourg Verlag, München, Wien 1970
- /23/ M.E.Fisher, J.Math.Phys.5, 944 (1964)
- /24/ N.D.Lang, H.Ehrenreich, Phys.Rev.168, 605 (1968)
- /25/ M.W.Stringfellow, J.Phys., (London) C 1, 950 (1968)
- /26/ M.E.Fisher, R.J.Burford, Phys.Rev.156, 583 (1967)
- /27/ R.Anders, Dissertation Universität München 1981
- /28/ S.Chikazumi, Physics of Magnetism, Wiley Press,
New York, London 1964
- /29/ J.R.Schneider, Acta Cryst.A 33, 235 (1977)
- /30/ F.Söffge, Dissertation Universität München 1977
- /31/ F.Söffge, Nucl.Instr.Meth.142, 399 (1977)
- /32/ N.Herzum, Dissertation Universität München 1972
- /33/ F.Söffge, W.v.Hörsten, Z.Phys.B 42, 47 (1981)
- /34/ R.M.Bozorth, D.M.Chapin, J.Appl.Phys.13, 320 (1942)
- /35/ H.Bittel, Forschungsberichte des Landes Nordrhein-Westfalen
Nr. 1729, Westdeutscher Verlag, Köln 1966
- /36/ F.C.Zumsteg, R.D.Parks, Phys.Rev.Lett.24, 520 (1970)
- /37/ W.v.Hörsten, ILL annual report 1980, Nr. 127
- /38/ K.Ibel, J.Appl.Cryst.9, 296 (1976)

- /39/ A.Guinier, E.Guyen, J.Appl.Phys.30, 622 (1959)
H.H.Atkinson, J.Appl.Phys.30, 637 (1959)
- /40/ J.Christ, W.Schilling, W.Schmatz, T.Springer,
Z.Angew.Phys.18, 295 (1965)
- /41/ "Cross sections" in Information Analysis Center Report,
Brookhaven, Upton, New York 11973, (1976)
- /42/ M.E.Fisher, A.Aharony, Phys.Rev.B 10, 2818 (1974)
- /43/ G.Maier, N.Stump, Z.Phys.238, (1970)
- /44/ L.v.Hove, Phys.Rev.95, 1374 (1954)
- /45/ V.J.Minkiewicz, M.F.Collins, R.Nathans, G.Shirane,
Phys.Rev.182, 624 (1969)
- /46/ A.M.Gottlieb, C.Hohenemser, Phys.Rev.Lett.31, 1222
(1973)
- /47/ J.Als-Nielsen, Phys.Rev.Lett.25, 730 (1970)
- /48/ M.E.Fisher, A.Aharony, Phys.Rev.Lett.30, 559 (1973)
- /49/ A.Aharony, M.E.Fisher, Phys.Rev.B 8, 3323 (1973)
- /50/ A.D.Bruce, J.M.Kosterlitz, D.R.Nelson, J.Phys.C 9,
825 (1976)
C.J.Glinka, V.J.Minkiewicz, Phys.Rev.B 16, 4084 (1977)
- /51/ A.S.Arrot, B.Heinrich, J.E.Noakes, AIP Conf. Proc. 10,
822 (1973)
- /52/ E.Kneller, Ferromagnetismus, Springer Verlag, Berlin
1962
- /53/ P.Pfeuty, D.Jasnow, M.E.Fisher, Phys.Rev.B 10, 2088
(1974)
- /54/ T.Tokunaga, J.Sci.Hiroshima Univ. Ser.A 38, 215 (1974)
- /55/ J.D.Sievert, Int.J.Magn.3, 75 (1972)

- /56/ C.Zener, Phys.Rev.96, 1335 (1954)
W.J.Carr, J.Appl.Phys.29, 436 (1958)
- /57/ D.Krause, Habilitationsschrift Universität München
1970
- /58/ D.Krause, B.Ludwig, U.Patz, Z.Angew.Phys.26, 76 (1969)
- /59/ J.Hubbard, Phys.Rev.B 23, 5974 (1981)
J.Hubbard, J.Appl.Phys.52, 1654 (1981)
- /60/ J.J.M.Franse, J.de Physique 32 CI, 186 (1971)
- /61/ K.Binder, H.Müller-Krumbhaar, Phys.Rev.B 7, 3297 (1973)
J.C.Le Guillou, J.Zinn-Justin, Phys.Rev.B 21, 3976
(1980)
- /62/ J.B.Sokoloff, J.Phys.(London) F 5, 1946 (1975)
H.Capellmann, J.Magn.Magn.Mater.21, 213 (1980)
R.E.Prange, J.Appl.Phys.50, 7445 (1979)
T.Moriya, J.Magn.Magn.Mater.14, 1 (1979)
K.Usami, T.Moriya, J.Magn.Magn.Mater.20, 171 (1980)

Herrn Prof.Dr.K.Stierstadt danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit, für seine verständnisvolle Unterstützung und für viele wertvolle Diskussionen.

Für die freundliche Aufnahme am Institut Laue-Langevin zur Durchführung von Neutronenstreuexperimenten möchte ich mich bei Herrn Prof.Dr.T.Springer und Herrn Dr.B.Maier, sowie bei vielen entgegenkommenden und hilfsbereiten Mitarbeitern des ILL bedanken. Mein besonderer Dank gilt Herrn R.Anders für die Hilfe und Zusammenarbeit bei diesen Experimenten, wie auch Herrn Dr.F.Söffge für sein aktives Interesse.

Den Mitarbeitern der Arbeitsgruppe und den Herren der Werkstatt der Sektion Physik gilt mein Dank für die langjährige gute Zusammenarbeit. An dieser Stelle sei auch die tatkräftige Unterstützung im organisatorischen Umfeld durch Herrn O.Stadler und die Damen und Herren der Geschäftsführung dankend hervorgehoben.

Das Bundesministerium für Forschung und Technologie hat diese Arbeit finanziell unterstützt.

LEBENS LAUF

Geburt: 21.5.1944 in Berlin

Eltern: Hans von Hörsten, Kunstmaler
Margot von Hörsten, geb. Przywara

Schule: 1950 - 60 Volksschule und Mittelschule in Borken (Hessen)
1960 - 63 Gymnasium in Treysa (Hessen) mit
Reifeprüfung am 4.3.1963

Wehrdienst: 1963 - 65 Soldat auf Zeit

Studium: 1965 - 69 Physik an der Technischen Universität Berlin
1969 - 72 Physik an der Universität München
Diplomarbeit unter Leitung von Herrn Prof.Dr.K.Stierstadt
über "Aufbau einer Apparatur zur Messung der Koerzitivkraft
an Nickel in der Umgebung des Curiepunktes."
Diplomprüfung am 17.2.1972

Beruf: 15.1.1973 - 31.3.1974 Physiker in der Entwicklungsabteilung
im Werk für Röhren, Siemens, Berlin.

Ab 1.4.1974 wissenschaftlicher Angestellter und Lehrbeauftragter an der Sektion Physik der Universität München.

Unter der Leitung von Herrn Prof.Dr.K.Stierstadt bis 1977
Arbeiten zum Thema: "Kritischer Superparamagnetismus von
Nickel-Ausscheidungen in Zeolithen und Salzgemischen",
dazu Forschungsaufenthalt am Analytisch-Chemischen Laboratorium der Universität Utrecht.

Ab 1977 Übernahme eines Projektes zur Untersuchung
kritischer magnetischer Neutronenstreuung an Nickel.
Während dieser Zeit Durchführung von Neutronenstreuungsexperimenten am Forschungsreaktor ILL, Grenoble,
und Anfertigung der vorliegenden Dissertation.

